

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

528366

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2004 年 4 月 1 日 (01.04.2004)

PCT

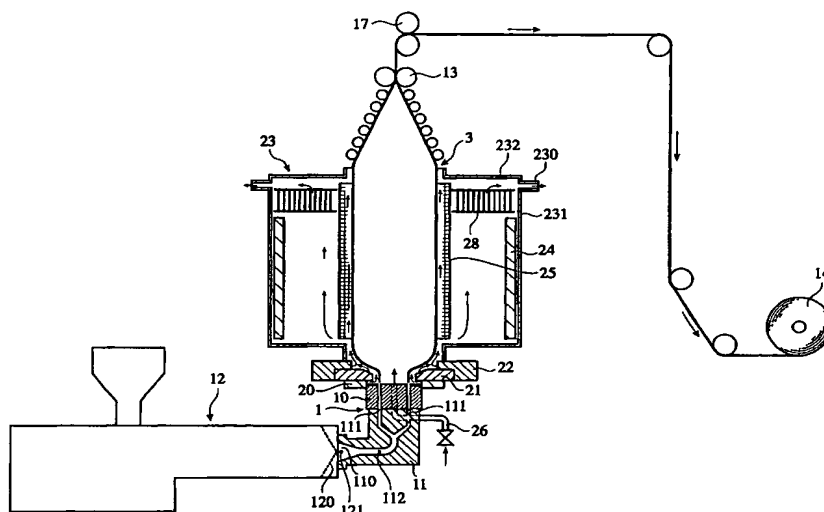
(10) 国際公開番号
WO 2004/026558 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B29C 47/00, 55/28, (74) 代理人: 高石 橋馬 (TAKAISHI, Kitsuma); 〒162-0825 東京都新宿区神楽坂 6 丁目 67 神楽坂 FN ビル 5 階 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/012103
- (22) 国際出願日: 2003 年 9 月 22 日 (22.09.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2002-275939 2002 年 9 月 20 日 (20.09.2002) JP
特願2003-1533 2003 年 1 月 7 日 (07.01.2003) JP
特願2003-1534 2003 年 1 月 7 日 (07.01.2003) JP
特願2003-122785 2003 年 4 月 25 日 (25.04.2003) JP
- (71) 出願人 および
(72) 発明者: 加川 清二 (KAGAWA, Seiji) [JP/JP]; 〒343-0807 埼玉県 越谷市 赤山町 1-252-1-304 Saitama (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: METHOD AND APPARATUS FOR PRODUCING POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE FILM, AND SHAPE-MEMORY POLYBUTYLENE TEREPHTHALATE LAMINATED FILM

(54) 発明の名称: ポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法及び製造装置、並びに形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム



(57) Abstract: A method for producing a polybutylene terephthalate film by the air-cooling inflation method involving inflating a tube of a molten polybutylene terephthalate resin extruded from a ring die by means of the injection of air, characterized in that the resin is extruded under a resin pressure of 8.3 to 13.7 MPa and at a resin temperature of from the melting point of the above polybutylene terephthalate resin - 15°C to the above melting point - 5°C.

(57) 要約: 環状ダイから押し出した熔融ポリブチレンテレフタレート樹脂のチューブを空気の注入により膨張させる空冷インフレーション法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する際に、押出樹脂圧力を8.3~13.7MPaとし、押出樹脂温度を上記ポリブチレンテレフタレート樹脂の融点-15°C~上記融点-5°Cとする方法。

WO 2004/026558 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告書

— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

明細書

ポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法及び製造装置、
並びに形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム

5 技術分野

本発明は、薄膜でありながら膜厚の均一性、耐熱収縮性及び機械的強度に優れたポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法及び装置、並びにそのポリブチレンテレフタレートフィルムを有する包装材として有用な形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムに関する。

10

背景技術

ポリブチレンテレフタレート (PBT) 樹脂は、機械的強度、耐熱性、耐薬品性、耐衝撃性、電気的性質等に優れているため、従来からエンジニアリング用プラスチックとして注目され、自動車部品、電気・電子部品等の射出品として使用されてきた。PBT はまたガスバリア性や保香性にも優れているので、膜厚の均一性や耐熱収縮性に優れた薄い PBT フィルム又はそれを含む積層フィルムができれば、包装材として有用である。しかし PBT には、(a) 結晶化した後に例えば長手方向に延伸すると、その後横方向への延伸ができず、(b) 熔融張力が低いため、急速な延伸ができず、(c) ガラス転移温度が常温に近い場合フィルム皺が発生しやすいといった問題がある。そのため、ポリブチレンテレフタレート樹脂を 10~30 μm 程度で均一な厚さを有するきれいな包装用フィルムに成形するのは極めて困難である。

15

20

25

T ダイ法により作製した未延伸フィルムに二軸延伸を施して PBT フィルムを製造する方法として、特開昭 49-80178 号は所定の温度で未延伸フィルムを同時に二軸延伸する方法を提案しており、特公昭 51-40904 号及び特開昭 51-146572 号は所定の温度と速度で未延伸フィルムを逐次二軸延伸する方法を提案している。しかしこれらの方法は、熔融ポリブチレンテレフタレート樹脂を急冷することにより作製した未延伸フィルムを二軸延伸するために、加工工程が複雑であり、得られるフィルムの熱収縮率も大きかった。ポリブチレンテレフタレートフィルム

の二軸延伸を容易にするために、他の樹脂フィルムと積層する方法、ポリエチレン、ポリプロピレン等の相溶性の良い樹脂をブレンドする方法等が提案されているが、いずれの方法でも包装フィルムとして最適な $10\sim 30\mu\text{m}$ 程度の膜厚まで薄膜化するのは困難であった。

- 5 一般的に T ダイ法に比較してインフレーション成形法は生産性が高く、薄いフィルムの製造に適している。しかしインフレーション成形法で製造したポリブチレンテレフタレートフィルムには、膜厚ムラが多く、熱収縮率が大いという問題がある。例えば、特公平 7-33048 号は、固有粘度が 1.0 以上の PBT 樹脂を押出樹脂温度が下式：

10
$$\text{融点 (}^{\circ}\text{C)} < \text{押出樹脂温度 (}^{\circ}\text{C)} < \text{融点} - 26 + 53 \times \text{固有粘度 (}^{\circ}\text{C)}$$

を満たすようにインフレーション成形法によりフィルム化する方法を提案している。しかしこの方法では、押出樹脂温度及び押出樹脂圧力の組合せの最適化がなされておらず、得られる PBT フィルムは比較的大きな熱収縮率を有する。

- PBT はポリエステル的一种であるが、もう 1 つの代表的なポリエステルとして
- 15 ポリエチレンテレフタレート (PET) がある。PET フィルムは優れたガスバリア性、熱に対する寸法安定性、充填機適性 (カールがないこと) 等の特性を有するので、PET フィルムを含む積層フィルムは、例えば即席食品用容器の蓋材として使用されている。しかしながら PET フィルムは靱強度が大いので、蓋体を開封した状態に維持する性質 (デッドホールド性) に乏しい。そのため蓋体は開封
- 20 後に簡単に閉じてしまい、熱湯が注ぎ難くいという問題がある。

- 即席麺用容器等に用いる蓋材を構成する積層フィルムには、容器にシールする時にカールしていないこと、及び容器から剥がした時にはカールした状態を維持する (デッドホールド性を有する) ことが求められる。通常蓋材は容器にヒートシールされるので、ヒートシール前はカールせず、ヒートシール時の熱によりカ
- 25 ールする形状記憶性があれば、非常に有用である。

しかし形状記憶性を有する積層フィルムからなる包装材料は今まで知られていない。一般に形状記憶性を有する樹脂は、ガラス転移点前後での弾性率変化が大い。形状記憶機構は、例えば(1) まず任意の形状Mに成形し、その形状Mの状態で加熱して結晶化 (結晶部分の絡み合い) あるいは分子間架橋によって固定点

を生じさせて形状を記憶させ、(2) 次いでガラス転移点以上で上記加熱温度未満の温度で外力を加えて形状Nに変形し、そのままガラス転移点未満の温度にすることにより形状Nに固定すると、(3) ガラス転移点以上に加熱することにより、外力を加えることなく形状Mに回復するというものである。PET は形状記憶性を有するものの、ガラス転移温度が約 70～80℃であるため、形状回復に要する温度が高過ぎる。

これに対して、PBT は約 20～45℃のガラス転移温度を有するので、実用的な温度での形状記憶性を利用できる包装材となり得る。例えば特開平 2-123129 号は、PBT と脂肪族ポリラクトンとのブロック共重合体からなる形状記憶性樹脂を記載している。また特開平 2-269735 号は、結晶融解エントロピーが 3 cal/g 以下となるように第 3 成分と共重合したポリエチレンテレフタレートからなる形状記憶性共重合ポリエステル成形体を記載している。さらに特開平 2-240135 号は、PBT とポリエチレングリコールとのブロック共重合体からなる形状記憶性樹脂を記載している。しかしこれらの文献はいずれも PBT 系形状記憶性樹脂をフィルム化していない。

発明の目的

従って、本発明の目的は、薄膜でありながら膜厚の均一性、耐熱収縮性及び機械的強度に優れたポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法及び装置を提供することである。

本発明のもう 1 つの目的は、優れた形状記憶性と耐熱寸法安定性を有するポリブチレンテレフタレート積層フィルムを提供することである。

発明の開示

上記目的に鑑み鋭意研究の結果、本発明者は以下のことを発見した。

(a) ポリブチレンテレフタレート (PBT) 樹脂を空冷インフレーション成形法によりフィルム化する PBT フィルムの製造方法において、押出樹脂温度を PBT 樹脂の融点－15℃～前記融点－5℃とし、かつ押出樹脂圧力を 8.3～13.7 MPa とすることにより、薄膜でありながら膜厚の均一性、耐熱収縮性及び機械的強度に優

れた PBT フィルムを製造できる。

(b) (1) 上記 PBT フィルムと他のフィルム又はフィルム積層体とを積層してなる積層フィルムを、第一の形状に保持しながら PBT フィルムのガラス転移温度 T_g 以下の温度 T_1 で賦形処理し、(2) 得られた賦形積層体を、 T_g を超える温度 T_2 で第二の形状に変形加工し、(3) T_g 以下の温度 T_3 まで冷却することにより、優れた形状記憶性と耐熱寸法安定性を有する PBT 積層フィルムが得られる。

(c) (1) (i) 上記 PBT フィルムと他のフィルム又はフィルム積層体との積層フィルムを予め作製し、これを第一の形状に保持しながら T_g 超～融点未満の温度 T_4 で賦形処理するか、(ii) 上記 PBT フィルムを第一の形状に保持しながら前記温度 T_4 で賦形処理した後他のフィルム又はフィルム積層体と積層することにより第一の形状を有する積層フィルムを作製し、(2) 得られた賦形積層体を T_g 以下の温度 T_5 まで冷却して第一の形状に固定し、(3) 次いで前記賦形積層体を、前記 T_g 超～前記温度 T_4 未満の温度 T_6 で第二の形状に変形加工した後、(4) T_g 以下の温度 T_7 まで冷却して第二の形状に固定することにより、優れた形状記憶性と耐熱寸法安定性を有する PBT 積層フィルムが得られる。

本発明はかかる発明に基づき完成したものである。

すなわち、本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法は、空冷インフレーション法により環状ダイから押し出した溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂のチューブを空気の注入により膨張させるもので、押出樹脂温度を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の融点 -15°C ～前記融点 -5°C とし、かつ押出樹脂圧力を $8.3\sim 13.7\text{ MPa}$ とすることを特徴とする。

前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の極限粘度は $0.8\sim 1.5$ であるのが好ましい。ダイリップの間隙は $0.8\sim 1.2\text{ mm}$ であるのが好ましく、ダイ径は $120\sim 250\text{ mm}$ であるのが好ましい。ブローアップ比は $2.0\sim 4.0$ であるのが好ましい。ブローアップ比を $2.0\sim 4.0$ とすることによりバブルを長手方向及び横方向に同時にバランス良く延伸することができる。

本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、(1) 前記環状ダイの付近に設けられた第一温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのネック部を前記融点 -40°C ～前記融点 -25°C に徐冷し、(2) 前記第

一温風吹出装置の上方に設けられた第二温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルの膨張部を前記融点 -70°C ～前記融点 -40°C に徐冷し、(3) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられた第三温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのフロストライン領域を前記融点 -130°C ～前記融点 -90°C に徐冷し、(4) 前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に間隙をもって設けた隔壁により、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げるのが好ましい。

前記隔壁に複数の温風排出口を設けるとともに、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を整流するために、前記隔壁の内側に整流板を設けるのが好ましい。前記第二温風吹出装置から噴出した温風により、前記バブルの膨張部は非晶質状態に保持されながら徐冷される。前記バブル領域を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度 T_g 乃至 $T_g+65^{\circ}\text{C}$ の温度に保持するために、前記隔壁に加熱手段を設けるのが好ましい。

前記バブルの横揺れを防止するために、前記バブル領域を円筒状ネットで包囲するのが好ましい。前記第一及び第二温風吹出装置から噴出させる温風の温度は $25\sim 50^{\circ}\text{C}$ であるのが好ましい。前記第三温風吹出装置から噴出させる温風の温度は前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度 T_g 乃至 $T_g+65^{\circ}\text{C}$ の温度であるのが好ましい。

本発明の空冷インフレーション法により得られたフィルムは、結晶化度が $35\sim 40\%$ であり、長手方向及び幅方向の熱収縮率が 0.4% 以下である。

得られた空冷インフレーションフィルムはさらに一軸又は二軸に冷延伸してもよい。これにより膜厚の均一性及び透明性が一層向上する。冷延伸は前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度 T_g 乃至 $T_g+60^{\circ}\text{C}$ の温度で行うのが好ましい。空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成と前記一軸又は二軸の冷延伸とは、連続的に行うのが好ましい。得られたチューブ状フィルムを二分割した後で一軸又は二軸に冷延伸しても良い。空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成、前記チューブ状フィルムの二分割、及び前記一軸又は二軸の冷延伸は連続的に行うのが好ましい。

本発明のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置は、(a) 熔融ポリブチレンテレフタレート樹脂をチューブ状に押し出す環状ダイと、(b) 得られたポリブチレンテレフタレートチューブ内に空気を注入してバブルを形成する手段と、(c) 前記環状ダイの付近に設けられ、前記バブルのネック部を徐冷する第一温風吹出装置と、(d) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルの膨張部を徐冷する第二温風吹出装置と、(e) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルのフロストライン領域を徐冷する第三温風吹出装置と、(f) 前記第三温風吹出装置の上方で、かつ前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に設けられ、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置より噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げるための隔壁とを具備し、前記隔壁は複数の温風排出口を有することを特徴とする。

本発明の製造装置において、前記隔壁の内側に整流板が設けられているのが好ましい。前記バブルの横揺れを防止するために、前記隔壁の内側に前記バブル領域を包囲する円筒状ネットを設けるのが好ましい。前記第二温風吹出装置から噴出した温風により前記バブルの膨張部を非晶質状態で徐冷するのが好ましい。得られた空冷インフレーションフィルムを冷延伸する手段をさらに有するのが好ましい。

前記環状ダイ、前記空気注入手段、前記第一温風吹出装置、前記第二温風吹出装置、前記第三温風吹出装置及び前記隔壁を有する空冷インフレーション手段と、前記冷延伸手段とは、空冷インフレーションフィルムの流れに沿って連続的に配置されているのが好ましい。

本発明の製造装置は、前記空冷インフレーション手段により形成されたチューブ状フィルムを引き取るニップロールを具備するとともに、前記空冷インフレーション手段と前記冷延伸手段との間に、(a) 前記ニップロールにより引き取られたシート状の前記チューブ状フィルムの耳端位置（エッジポジション）を制御する装置と、(b) 前記耳端位置が制御された前記チューブ状フィルムを二分割する切断手段とをさらに有し、前記空冷インフレーション手段と、前記エッジ・ポジション制御装置と、前記切断手段と、前記冷延伸手段とがこの順に連続しているのが好ましい。

本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムは、(1) 本発明の製造方法により得られるポリブチレンテレフタレートフィルムと、(2) 紙シート、他の樹脂フィルム及び金属箔からなる群から選ばれた少なくとも一種からなる他のフィルム又はフィルム積層体とを有し、所定の温度域で第一の形状を記憶させたことを特徴とする。

本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムは、前記所定の温度域と異なる温度域で第二の形状に変形加工されても、前記第一の形状を記憶させた温度以上に曝されると、実質的に前記第一の形状に戻る。

本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムの好ましい例では、前記第一の形状に戻る温度は、前記ポリブチレンテレフタレートのガラス転移温度以下である。前記第一の形状に戻る温度は 15～25℃であるのがより好ましい。

本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムの別の好ましい例では、前記第一の形状に戻る温度は、前記ポリブチレンテレフタレートのガラス転移温度超～融点未満である。前記第一の形状に戻る温度は 75～100℃であるのがより好ましい。

前記第一の形状はカール形状であるのが好ましく、前記第二の形状はほぼ平坦な形状又は逆カール形状であるのが好ましい。

前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの少なくとも一面に多数の実質的に平行な線状痕を全面的に形成するのが好ましく、これにより形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムを前記線状痕に沿って実質的に直線的に裂くことができる。前記線状痕の深さは前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの厚さの 1～40%であるのが好ましい。具体的には、前記線状痕の深さは 0.1～10 μm であり、前記線状痕の幅は 0.1～10 μm であり、かつ前記線状痕同士の間隔は 10～200 μm であるのが好ましい。前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの少なくとも一面にセラミック又は金属を蒸着してもよい。

本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムの好ましい層構成の例は、順に、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムと、前記紙シートと、シーラントフィルムとを有するものである。本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムの好ましい層構成の別の例は、順に、前記ポリブチレン

テレフタレートフィルムと、前記紙シートと、剛性フィルムと、シーラントフィルムとを有するものである。本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムの好ましい層構成のさらに別の例は、順に、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムと、剛性フィルムと、シーラントフィルムとを有するものである。

- 5 前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの前記紙シート側の面か、前記剛性フィルムの前記シーラントフィルム側の面に遮光性インク層を設けても良い。

本発明の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムは、包装材として有用であり、特に容器用蓋体を構成する包装材として有用である。

10 図面の簡単な説明

図1は本発明の空冷インフレーション成形法によるポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する装置の一例を示す概略図であり、

図2はバブルを徐冷する装置の一例を示す概略断面図であり、

図3(a)は整流板の一例を示す平面図であり、

- 15 図3(b)は整流板の別の例を示す平面図であり、

図3(c)は整流板のさらに別の例を示す平面図であり、

図4(a)は空冷インフレーション成形法により製造したPBTフィルムを逐次二軸冷延伸する装置の一例を示す部分断面概略側面図であり、

図4(b)は図4(a)の装置の概略平面図であり、

- 20 図5(a)は空冷インフレーション成形法により製造したPBTフィルムを長手方向に冷延伸する装置の一例を示す概略側面図であり、

図5(b)は空冷インフレーション成形法により製造したPBTフィルムを長手方向に冷延伸する装置の別の例を示す概略側面図であり、

- 25 図5(c)は空冷インフレーション成形法により製造したPBTフィルムを長手方向に冷延伸する装置のさらに別の例を示す概略側面図であり、

図6は空冷インフレーション成形法により製造したPBTフィルムをインライン方式により冷延伸する装置の一例を示す概略図であり、

図7は形状記憶PBT(PBT)フィルム積層体の層構成例を示す断面図であり、

図8は形状記憶PBT積層フィルムの別の層構成例を示す断面図であり、

図 9 は形状記憶 PBT 積層フィルムのさらに別の層構成例を示す断面図であり、
図 10 は形状記憶 PBT 積層フィルムのさらに別の層構成例を示す断面図であり、
図 11 は形状記憶 PBT 積層フィルムのさらに別の層構成例を示す断面図であり、
図 12 は形状記憶 PBT 積層フィルムのさらに別の層構成例を示す断面図であり、
5 図 13 は形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置の一例を示す概略図であり、
図 14 は形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置の別の例を示す概略図であ
り、

図 15 は形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置のさらに別の例を示す概略
図であり、

10 図 16 は形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置のさらに別の例を示す概略
図であり、

図 17 は形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置のさらに別の例を示す概略
図であり、

図 18 は蓋体付き容器を製造する装置の一例を示す概略図であり、

15 図 19 は注湯のために、本発明の形状記憶 PBT 積層フィルムからなる蓋体を開
封した即席食品用容器を示す斜視図であり、

図 20 は注湯のために、本発明の形状記憶 PBT 積層フィルムからなる蓋体を部
分的に破断して開封した即席食品用容器を示す斜視図であり、

20 図 21 は本発明の蓋体付き容器を半固体状食品用容器として用いた例を示す斜
視図であり、

図 22 は図 21 の蓋体付き容器を開封した状態を示す斜視図であり、

図 23 は食品用トレイに用いられた形状記憶 PBT 積層フィルムが形状回復する
様子を示す概略図であり、

25 図 24 はフィルムの進行方向に線状痕を形成する装置の一例を示す概略図であ
り、

図 25 は図 24 に示す装置において、フィルムがパターン・ロールと摺接する面
に圧縮空気を吹き付ける様子を示す部分拡大図であり、

図 26 は図 24 に示す装置において、フィルムがパターン・ロールと摺接する様
子を示す部分拡大横断面図であり、

図 27(a)はノズルの一例を示す正面図及び右側面図であり、

図 27(b)はノズルの別の例を示す正面図及び右側面図であり、

図 27(c)はフードを有するノズルを用いてパターン・ロールに圧縮空気を吹き付ける様子を示す概略図であり、

- 5 図 28 はフィルムの進行方向に線状痕を形成する装置の別の例を示す概略図であり、

図 29 はフィルムの進行方向に対して斜めの線状痕を形成する装置の一例を示す斜視図であり、

- 10 図 30(a)は図 29 に示す装置において、フィルムがパターン・エンドレスベルトと摺接する様子を示す部分拡大平面図であり、

図 30(b)は図 30(a)において D 方向から見た概略断面図であり、

図 31 はフィルムの進行方向に対して斜めの線状痕を形成する装置の別の例を示す概略図であり、

- 15 図 32 は図 31 に示す装置において、フィルムがロールトレインと摺接する様子を示す部分拡大平面図であり、

図 33(a)はフィルムを進行方向に対して斜めの線状痕を形成する装置の別の例を示す部分拡大平面図であり、

図 33(b)は図 33(a)において E 方向から見た概略図であり、

- 20 図 34 はフィルムを進行方向に対して幅方向の線状痕を形成する装置の一例を示す部分拡大平面図であり、

図 35 はフィルムを進行方向に対して幅方向の線状痕を形成する装置の別の例を示す部分拡大平面図であり、

図 36 はフィルムを進行方向に対して幅方向の線状痕を形成する装置の別の例を示す部分拡大平面図であり、

- 25 図 37(a)はフィルムを進行方向に対して幅方向の線状痕を形成する装置の別の例を示す部分拡大平面図であり、

図 37(b)は図 37(a)において F 方向から見た概略図である。

発明を実施するための最良の形態

[1] ポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法

(I) 原料ポリブチレンテレフタレート樹脂

原料とするポリブチレンテレフタレート (PBT) 樹脂に特に制限はないが、1,4-ブタンジオールとテレフタル酸とを構成成分とするホモポリマーからなるのが好ましい。但し形状記憶性、熱収縮性等の物性を損なわない範囲で、1,4-ブタンジオール以外のジオール成分、又はテレフタル酸以外のカンボン酸成分を共重合成分として含んでもよい。そのようなジオール成分としては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1,4-シクロヘキサメタノール等が挙げられる。ジカルボン酸成分としては、例えば、イソフタル酸、セバシン酸、アジピン酸、アゼライン酸、コハク酸等が挙げられる。好ましい PBT 樹脂の具体例としては、例えば東レ (株) から商品名「トレコン」として市販されているホモ PBT 樹脂を挙げる事ができる。

PBT 樹脂は PBT のみからなる場合に限定されず、本発明の効果を阻害しない範囲で目的に応じて他の熱可塑性樹脂を含有しても良い。他の熱可塑性樹脂としてはポリエチレンテレフタレート (PET)、ポリエチレンナフタレート (PEN) 等のポリエステル；ポリフェニレンサルファイド (PPS)；ポリアミド (PA)；ポリイミド (PI)；ポリアミドイミド (PAI)；ポリエーテルサルフォン (PES)；ポリエーテルエーテルケトン (PEEK)；ポリカーボネート；ポリウレタン；フッ素樹脂；ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン；ポリ塩化ビニル；エラストマー等を挙げる事ができる。他の熱可塑性樹脂を含有する場合、その割合は PBT 樹脂全体を 100 質量%として、5～15 質量%であるのが好ましく、5～10 質量%であるのがより好ましい。従って、特に断りがない限り、本明細書において使用する用語「ポリブチレンテレフタレート樹脂」は、PBT 単体、及び PBT+他の熱可塑性樹脂の組成物の両方を含むものと理解すべきである。

PBT フィルムの分子量は、比較的高いのが好ましい。分子量が高い程、環状ダイから押し出した熔融 PBT 樹脂のチューブを空気の注入により膨張させてバブルを形成した際に、バブルの膨張部を非晶質状態に保持しやすい。具体的には、PBT フィルムの IV 値 (極限粘度) は 0.8～1.5 であるのが好ましい。

PBT 樹脂には一般の熱可塑性樹脂及び熱硬化性樹脂に添加される公知の添加

剤、すなわち可塑剤、酸化防止剤や紫外線吸収剤等の安定剤、帯電防止剤、界面活性剤、染料や顔料等の着色剤、流動性の改善のための潤滑材、結晶化促進剤（核剤）、無機充填材等も要求性能に応じ適宜使用することができる。

(II) 空冷インフレーション成形

- 5 図1は、本発明の空冷インフレーション成形法による PBT フィルムの製造方法の工程を示す。押出機 12 に取り付けられた環状ダイ 1 から押出したチューブ状フィルムは、空気注入管 26 から内部に空気を送り込むことにより急激に所定の幅のフィルムに膨張させ、引取り機ニップロール 13 に挟むことにより引き取り、巻き取りリール 14 により巻き取る。環状ダイ 1 は環状のダイヘッド 10 及び
- 10 ウェルド部 11 を有する。チューブ状フィルムに注入する空気を供給する空気注入手段に特に制限はなく、空気注入管 26 をブロワーに接続した構成の手段、空気注入管 26 を圧縮空気ポンペに接続した構成の手段等を挙げることができる。

- PBT フィルムを製造するには、まず PBT 樹脂及び所望の添加剤などの混練を行う。混練温度及び混練圧力を、後述する押出樹脂温度及び押出樹脂圧力が本発明の範囲となるように調整する。混練温度が必要以上に高くならないように、一
- 15 軸押出機のような押出機中で混練を行う場合、発熱しないようなスクリュウ構造を有するもの、又は適当な冷却装置を有するものを使用する。

- PBT 樹脂の押出樹脂温度は PBT 樹脂の融点（以下特段の断りがない限り単に「融点」と呼ぶ） -15°C ～融点 -5°C とし、好ましくは融点 -10°C ～融点 -5°C
- 20 とする。なお押出樹脂温度は、押出機 12 の出口 110 とダイヘッド 10 の入口 111 とを結ぶウェルド部 11 の樹脂流路内に設けた温度検出器 112（熱電対等）により測定したものである。樹脂の押出速度は非常に速いので、押出機 12 の出口 110 及びダイヘッド 10 の出口においてもほぼ融点 -15°C ～融点 -5°C の温度範囲内であると推定される。但しウェルド部 11 の構造は図示のものに限られない。例
- 25 えば PBT 樹脂がホモポリマーの場合、その融点は 220°C であるので、押出樹脂温度は $205\sim 215^{\circ}\text{C}$ であり、好ましくは $210\sim 215^{\circ}\text{C}$ とする。押出樹脂温度を融点 -15°C ～融点 -5°C とすることにより、結晶化度が高く、かつ膜厚の均一性及び耐熱収縮性に優れた PBT フィルムが得られる。

押出樹脂圧力は $8.3\sim 13.7\text{ MPa}$ ($85\sim 140\text{ kgf/cm}^2$) とする。装置の構成上ダ

ヘッド 10 内の樹脂圧力を測定することができないので、押出機出口 110 に設けた圧力検出器 121 により測定した圧力を押出樹脂圧力とする。押出樹脂圧力を 8.3~13.7 MPa とすることにより、押出樹脂温度が融点 -15°C ~融点 -5°C であっても、バブルを形成するために十分な熔融粘度の樹脂を押し出すことができる。

- 5 押出樹脂圧力は 9.3~11.8 MPa (95~120 kgf/cm²) とするのが好ましい。押出樹脂圧力は、押出機中のスクリーンパック 120 のメッシュを変えたり、環状オリフィスの間隙を変えたりすることにより調節することができる。

ダイヘッド 10 のダイリップの外径は 120~250 mm であるのが好ましく、またダイリップの間隙は 0.8~1.2 mm であるのが好ましい。

- 10 環状ダイ 1 から押し出したバブル 3 は、冷却装置により徐冷しながら MD (長手方向) のみならず TD (横方向) にも延伸する。図 2 において、バブル冷却装置は、環状ダイ 1 の付近に設けられた第一温風吹出装置 20 と、第一温風吹出装置 20 の上方に設けられた第二温風吹出装置 21 と、第二温風吹出装置 21 の上方に設けられた第三温風吹出装置 22 と、第三温風吹出装置 22 の上方に設けられた隔壁 23 と、隔壁 23 の内側に設けられた加熱手段 24 と、隔壁 23 の内側 (バブル 3 側) に設けられた円筒状ネット 25 とを有する。なお図 2 において、15 は環状ダイ 1 の上方に設けられた断熱材を示し、16 はガイドロールを示す。

- 15 以上の構成の装置において、各温風吹出装置 20~22 及び隔壁 23 の配置は空冷インフレーション成形法により形成されるバブル 3 の温度コントロールにより決まるので、以下にバブル 3 の形状及び温度分布について説明する。

- 20 ダイ 1 の環状オリフィス 100 より熔融した PBT 樹脂又は PBT 樹脂組成物を押し出して、バブル 3 を形成するが、押し出した直後のバブル 3 は、熔融張力が低いために細径状となり、いわゆるネック部 31 を形成する。ネック部 31 において、バブル 3 は主として MD に延伸される。次にバブル 3 を急激に膨張させ、所定のバブル径とする。この膨張部 32 において、バブル 3 は MD 及び TD に同時に延伸される。膨張部 32 のほぼ上方付近にフロストライン 34 があり、ここで PBT 樹脂は冷却固化状態となる。フロストライン 34 より上方のバブル領域 33 に設けられた隔壁 23 及び加熱手段 24 により、バブル 3 はさらに徐冷される。

本発明の如く空冷インフレーション成形法により PBT フィルムを得るために

は、バブル 3 の各部の温度を以下の通りコントロールする。

(a) 押出樹脂温度を融点 -15°C ～融点 -5°C に制御。

(b) ネック部 31 では融点 -40°C ～融点 -25°C に徐冷。

(c) 膨張部 32 では融点 -70°C ～融点 -40°C に徐冷。

5 (d) フロストライン 34 の領域では融点 -130°C ～融点 -90°C に徐冷。

(e) バブル領域 33 では PBT 樹脂の T_g 超 $\sim T_g+65^{\circ}\text{C}$ 以下に保持。

上記条件(a)については、上述の通りであるが、条件(b)については、ネック部 31 で融点 -40°C ～融点 -25°C に徐冷しないと、次の膨張部 32 で MD 及び TD への同時二軸延伸を十分に達成することができない。すなわちネック部 31 で融点 -40°C ～融点 -25°C に徐冷することにより、膨張部 32 を融点 -70°C ～融点 -40°C に徐冷／保持することができる[条件(c)]。PBT 樹脂がホモポリマーの場合、
10 ネック部 31 を $180\sim 195^{\circ}\text{C}$ に徐冷するのが好ましい。膨張部 32 を融点 -70°C ～融点 -40°C に保持しないと、膨張部 32 で適度な溶融張力を有さず、MD の延伸が主となってしまい、薄膜化できない。膨張部 32 を融点 -70°C 未満としてしまうと、結晶化が進行するので、非晶質状態を保持できない。PBT 樹脂がホモポリ
15 マーの場合、膨張部 32 を $150\sim 180^{\circ}\text{C}$ に徐冷するのが好ましい。

このような温度条件を満たすためには、ブローアップ比 (バブル径／ダイ径) を $2.0\sim 4.0$ にするのが好ましい。特にブローアップ比は $2.0\sim 2.8$ にするのが望ましい。

20 条件(d)について、フロストライン 34 の領域でのバブル温度を融点 -130°C ～融点 -90°C に徐冷することにより、バブル 3 の MD 及び TD への同時二軸延伸を十分に達成することができる。フロストライン 34 の領域においてバブル温度が融点 -130°C より低いと、フィルム皺が発生する恐れがある。PBT 樹脂がホモポリマーの場合、フロストライン 34 の領域を $90\sim 130^{\circ}\text{C}$ に徐冷するのが好ましい。

25 条件(e)については、フロストライン 34 の上方でバブル 3 を PBT 樹脂の T_g 超 $\sim T_g+65^{\circ}\text{C}$ 以下に保持することにより、フィルム皺の発生を防止でき、かつ均一な薄いバブル 3 の形成を安定化することができる。好ましくはバブル領域 33 を $90\sim 110^{\circ}\text{C}$ に保持する。隔壁 23 及び加熱手段 24 を設けずに、バブル領域 33 の温度を T_g 以下に保つと、不均一な延伸が起こるおそれがあり、そのためバブル

3全体が不安定となる。PBT樹脂の T_g は、一般的に $22 \sim 45^\circ\text{C}$ である。 T_g は JIS K7121 に準じて測定した。

本発明においては、図2に示すように、バブル領域 33 の外周を円筒状ネット 25 でさらに囲うのが好ましい。これによりバブル領域 33 の温度を一層安定化することができ、かつバブル 3 の横揺れを防止することができる。

以上のようなバブル 3 の温度コントロールを行うために、第一温風吹出装置 20、第二温風吹出装置 21、第三温風吹出装置 22、隔壁 23、加熱手段 24、及び円筒状ネット 25 の配置は以下の通りである。

(i) 第一温風吹出装置 20

- 10 環状ダイ 1 の直近に設け、ネック部 31 の温度が融点 -40°C ～融点 -25°C に徐冷されるように、温風を噴出させる。かかる温風の温度は $25 \sim 50^\circ\text{C}$ であるのが好ましい。

(ii) 第二温風吹出装置 21

- 15 膨張部 32 の直下に設け、膨張部 32 の温度が融点 -70°C ～融点 -40°C に徐冷されるように、温風を噴出させる。かかる温風の温度は $25 \sim 50^\circ\text{C}$ であるのが好ましい。

(iii) 第三温風吹出装置 22

- 20 フロストライン 34 の直下に設け、フロストライン 34 の領域の温度が融点 -130°C ～融点 -90°C に徐冷されるように、温風を噴出させる。かかる温風の温度は、PBT樹脂の T_g 超 $\sim T_g + 65^\circ\text{C}$ 以下であるのが好ましい。

(iv) 隔壁 23 及び加熱手段 24

- 25 隔壁 23 は第三温風吹出装置 22 の上方の位置で、バブル領域 33 を包囲しかつ第一～第三温風吹出装置より噴出した温風がバブル領域 33 の外面に沿って吹き上がるように設ける。加熱手段 24 は隔壁 23 の内側に設ける。隔壁 23 及び加熱手段 24 を設けることにより、バブル領域 33 を外部雰囲気（気温・温度等）の影響から遮断し、常に PBT樹脂の T_g 超 $\sim T_g + 65^\circ\text{C}$ 以下に保持することができる。

(v) 円筒状ネット 25

隔壁 23 の内側で、バブル領域 33 を包囲するように設ける。

以上の方法において、第一～第三温風吹出装置のそれぞれより噴出させるため

の温風を供給する手段に特に制限はなく、温度コントロール可能なブロー等
を挙げることができる。第一～第三温風吹出装置のそれぞれより噴出させる温風の
流量は、ネック部 31、膨張部 32 及びフロストライン 34 の領域でのバブル温度
がそれぞれ上記の温度範囲となるように適宜調節する。安定した徐冷効果が得ら
5 れないとバブル 3 が不安定となるので、温風の温度はできるだけ変化しないよう
にコントロールする。

隔壁 23 の材質に特に制限はないが、隔壁 23 で包囲されたバブル領域 33 が観
察できるようにアクリル樹脂であるのが好ましい。バブル領域 33 を四方から囲
むことができれば隔壁 23 の形状に特に制限はなく、例えば円筒型構造のものや、
10 直方体型構造のものが挙げられるが、円筒型構造であるのが好ましい。隔壁 23
の内側に設ける加熱手段 24 としては、例えば棒状やリボン状の電気ヒーターを
挙げることができる。棒状の電気ヒーターは、複数設けるのが好ましい。隔壁 23
の内面にアルミニウム箔を張り付け、熱放射を遮断できる構成としてもよい。必
要に応じて隔壁 23 の下部（第三温風吹出装置 22 の直上）に、室温程度の冷風を
15 吹き上げる手段を設けてもよい。これにより隔壁 23 内側の温度調整が容易とな
るだけでなく、隔壁 23 内側の空気流量調整も容易となる。

図 2 に示すように、隔壁 23 の上部に温風排出口 230 を設けるのが好ましい。
温風排出口 230 を設けることにより、第一～第三温風吹出装置から噴出した温風
を整流することができる。このため温風によるバブル 3 の横揺れを防止すること
20 ができる。温風排出口 230 は 2 個以上設けるのが好ましく、2～4 個設けるのが
より好ましい。図 2 に示す例では、隔壁 23 の側面 231 の上部に温風排出口 230
を設けているが、隔壁 23 の上面 232 に設けてもよい。但し温風排出口 230 の数
及び口径は、隔壁 23 による保温性が損なわれない程度とする。

図 2 に示すように、隔壁 23 の内側上部にリング状の整流板 28 を設けるのが好
25 ましい。整流板 28 を設けることにより、第一～第三温風吹出装置から噴出した
温風を整流する能力が向上し、バブル 3 の横揺れ防止性が一層向上する。図 2 に
示すように、整流板 28 は円筒状ネット 25 の近傍から隔壁 23 の内側面近傍まで
延在するのが好ましい。整流板 28 の構造に制限はなく、図 2 及び図 3 (a) に示す
ような一方向に並んだ板材により仕切られた構造のもの、図 3 (b) に示すような格

子状に仕切られた構造のもの、図 3 (c) に示すような多数の丸孔が設けられたパンチングプレート状のもの、ネット状のもの等が挙げられる。整流板 28 の開孔率は 40~60% であるのが好ましい。整流板 28 を構成する材料に特に制限はなく、アルミニウム、合成樹脂等が挙げられる。整流板 28 の設置枚数にも特に制限はないが、通常は一枚設ければよい。

円筒状ネット 25 を構成する繊維としては、シルク、綿等の天然繊維、ナイロン、ポリプロピレン、ポリエステル等のプラスチック繊維、ステンレススチール、銅、黄銅、ニッケル等の金属繊維等を用いることができる。円筒状ネット 25 としてネット状のものを用いる場合、その網目が 5~20 メッシュのものが好ましく、特に 8~10 メッシュのものが好ましい。

本発明における PBT 樹脂の空冷インフレーション成形法による製膜は以上の要件を保持することにより可能であり、他の条件はインフレーション方式の一般的な条件が適用できる。即ちクロスヘッドダイを用いて、上方又は下方にチューブ状熔融 PBT 樹脂を押出し、端をピンチロールで挟んでその中に空気を送り込んで所定のサイズに膨らませつつ連続的に巻き取り、この間ダイを回転又は反転して偏肉を防止する事もできる。

本発明の製造方法によれば、常にバブルの各部（押し出し直後、ネック部、膨張部、フロストライン領域、バブル領域）がそれぞれ所望の温度に維持されるので、品質が常に均一である。さらに高速製膜が可能である。

(III) 延伸工程

以上説明した空冷インフレーション成形により得られた PBT フィルム（インフレーション PBT フィルム）を、PBT 樹脂の T_g 超~ $T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度で、さらに長手方向又は横方向に一軸冷延伸するか、長手方向及び横方向に逐次二軸冷延伸してもよい。これによりインフレーション PBT フィルムをさらに薄膜化でき、かつフィルムの膜厚の均一性及び透明性が向上する。好ましい冷延伸温度は $55\sim 65^{\circ}\text{C}$ である。かかる一軸冷延伸の延伸率は、長手方向又は横方向に 2 倍以上とするのが好ましく、2~6 倍とするのがより好ましい。一軸冷延伸を行う場合は、長手方向に行うのが好ましい。かかる逐次二軸冷延伸の延伸率は、面倍率で 4 倍以上とするのが好ましく、4~16 倍とするのがより好ましい。

一般的に PBT フィルムを、 $T_g+60^{\circ}\text{C}$ 超の温度で延伸すると、延伸方向に結晶が配向するので、配向方向における引張強度、弾性率、剛性等は大幅に向上する。

しかし配向していない方向における強度が低下するので、 $T_g+60^{\circ}\text{C}$ 超の温度で逐次二軸延伸を行うとフィルムが裂けるといった問題がある。これに対して、PBT

- 5 樹脂の T_g 超 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度で PBT フィルムを冷延伸した場合、 $T_g+60^{\circ}\text{C}$ 超の温度で延伸した場合に比べて延伸方向への分子鎖の配向が少ない。このため T_g 超 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度で、インフレーション PBT フィルムに対して逐次二軸延伸を行ってもフィルムは裂けない。しかも T_g 超 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度で冷延伸することにより、一軸延伸を行った場合でも易裂性を生じない。また T_g 超
- 10 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度で冷延伸することにより、結晶が破壊されて微小な球晶が生成するので、フィルムの透明性が向上する。

空冷インフレーション成形により得られた PBT フィルムはチューブ状なので、一軸冷延伸をロール法で行う場合、又は逐次二軸冷延伸をロール法及びテンター法で行う場合には、チューブ状の PBT フィルムを 2 つに切断した上で冷延伸を

15 施す。チューブ状のインフレーション PBT フィルムを 2 つに切断するには、重ね折りされたシートの状態で、両端折部からシート面に対して水平にカッターで裂くか、横方向の両端耳部をスリッターで切り落とす。

- (a) 空冷インフレーション成形、(b) チューブ状インフレーション PBT フィルムの切断及び(c) 冷延伸からなる工程は、空冷インフレーション成形後、2 つに
- 20 切断した各インフレーション PBT フィルムをそれぞれ一旦別の巻きフィルムとし、各巻きフィルムを順次巻き戻しながら冷延伸を行う逐次工程であってもよいが、上記(a)~(c)の工程を一連のライン上で連続的に行うインライン工程であるのが好ましい。

- 図 4 (a)及び(b)は、空冷インフレーション成形により得られた PBT フィルムを
- 25 予め 2 つに切断し、一旦巻きフィルムとした後、長手方向及び横方向に逐次二軸冷延伸する装置の一例を示す。

巻き出されたインフレーション PBT フィルム 2 は、長手方向延伸部 4 において遅駆動ロール 41 と、速駆動ロール 42 の間の加熱ロール 43 で長手方向に延伸する。長手方向に延伸した PBT フィルム 2 は、テンター 5 (横方向延伸部) に

入れ、フィルム両端を保持したまま加熱し、横方向に延伸し、熱処理する。横方向にも延伸した PBT フィルム 2 は、冷却塔 27 で冷却空気を吹き付けることにより急冷する。

長手方向の延伸は、図 5 (a) に詳細に示すように、最前部の遅駆動ロール 41 と、
5 最後部の速駆動ロール 42 の間に、回転自在である加熱ロール 43 を多数配置し、それらの間にインフレーション PBT フィルム 2 を通し、遅駆動ロール 41 と速駆動ロール 42 との周速比を適宜設定することにより達成する。加熱ロール 43 の温度は、インフレーション PBT フィルムの温度が、その T_g 超 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度となるように設定する。

10 図 5 (b) 及び (c) は、長手方向延伸部 4 の別の例を示す。図 5 (b) はニップロール式の例を示し、(c) はクローバーロール式の例を示す。いずれの方式でもインフレーション PBT フィルム 2 を複数の予備加熱用ロール 43 で予備加熱し、その後それぞれ加熱した遅駆動ロール 41 と速駆動ロール 42 との間で加熱延伸し、次いで複数の冷却用ロール 44 で冷却する。

15 テンター 5 では、フィルムクリップローラー 51 を備えたチェーン（図示せず）がレール（図示せず）に沿ってエンドレスに循環する。テンター 5 は、予熱部、延伸部及び熱処理部の 3 部よりなる。長手方向に延伸された PBT フィルム 2 は、予熱部、延伸部及び熱処理部のそれぞれにおいて、温風導入孔 53 から導入した温風を吹き付けることにより加熱する。図 4 において、52 はギヤを示し、54 は
20 温風を PBT フィルム 2 に均一に吹き付けるためのフードを示す。予熱部、延伸部及び熱処理部において噴出させる温風の温度は、各部を通る PBT フィルム 2 の温度がそれぞれ T_g 超 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度に保持されるように設定する。冷却塔 27 による急冷は、延伸後の PBT フィルム 2 がガラス転移温度以下の温度となるようにする。

25 インフレーション PBT フィルム 2 を長手方向又は横方向に一軸冷延伸するのみの場合は、以上説明した長手方向延伸部 4 又は横方向延伸部 5 のみでインフレーション PBT フィルム 2 を延伸した後、急冷すればよい。

長手方向又は横方向への一軸冷延伸、並びに長手方向及び横方向への逐次二軸冷延伸は、図 4 に示すようなロール方式やテンター方式に限られるものではなく、

チューブラー法等の方法も採用することができる。チューブラー法を採用する場合は、(a) 空冷インフレーション成形及び(b) 冷延伸からなる工程は、一連のライン上で連続的に行うインライン工程であるのが好ましい。

- 図6は、空冷インフレーション成形、チューブ状インフレーション PBT フィルムの切断及び冷延伸を一連のライン上で連続的に行うためのインライン装置の例を示す。引取り機ニップロール 13 により挟んで引き取ったチューブ状フィルム 2 は、折り畳まれたシートの状態で、カッター18により両端折部からシート面に対して水平に裂き、上下に分割した各インフレーション PBT フィルム 2', 2' のそれぞれに対して長手方向延伸部 4, 4 において冷延伸する。図6に示すように、カッター18の前にエッジ・ポジション制御装置 (EPC: Edge Position Control Unit) 6 を設けるのが好ましい。これによりカッター18で切断する際に、インフレーション PBT フィルムの耳端位置 (エッジ・ポジション) を常に一定位置に制御しておくことができるので、常にチューブ状インフレーション PBT フィルム 2 を均一に分割することができる。図6に示すエッジ・ポジション制御装置 6 は、二本のガイドロール 61, 61 と、ガイドロール 61, 61 を連結する連結軸 62 と、センサー63 とを有し、センサー63からの指令によりガイドロール 61, 61 の傾斜度が変化し、インフレーション PBT フィルム 2 の耳端位置 (エッジ・ポジション) を常に一定に制御することができる。エッジ・ポジション制御装置としては、図示のものに限らず公知の他の制御機構のものも使用可能である。
- 長手方向延伸部 4, 4 では、加熱した遅駆動ロール 45, 45 と、冷却した速駆動ロール 46, 46 との間で、各インフレーション PBT フィルム 2', 2' を冷延伸する。遅駆動ロール 45, 45 の温度は、インフレーション PBT フィルムの温度が、その T_g 超 $\sim T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以下の温度となるように設定する。速駆動ロール 46, 46 の温度は、インフレーション PBT の T_g 以下、好ましくは T_g 未満の温度に設定する。延伸率は、遅駆動ロール 45, 45 と速駆動ロール 46, 46 との周速比を適宜設定することにより調節すればよい。長手方向延伸部 4, 4 の後に、図4に示すテンター5 (横方向延伸部) を設け、さらに横方向への冷延伸ができる構成としてもよい。

図6に示すようにヒーター19を設け、ニップロール 17, 17 で水平に保持しな

がら冷延伸後のフィルムを熱処理するのが好ましい。ヒーター19に代えて、ロー
ル加熱により熱処理しても構わない。熱処理は、PBTの T_g 超～融点 -50°C 以下
で行うのが好ましい。冷延伸後の熱処理により、透明性、引張強度、耐熱収縮性
及び膜厚の均一性が一層向上するとともに、皺の発生も抑制することができる。

5 熱処理を $T_g+60^{\circ}\text{C}$ 以上～融点 -50°C 以下で行うことにより、フィルムに直線的
易裂性を付与することができる。フィルムに直線的易裂性を付与しない場合は、
熱処理を T_g 超～ $T_g+60^{\circ}\text{C}$ 未満で行えばよい。このように熱処理温度を変えるこ
とにより、フィルムの直線的易裂性及びそれに伴う引裂き強度を変化させること
ができる。

10 図6に示すインライン装置を用いることにより、(a) 空冷インフレーション成
形、(b) チューブ状インフレーション PBT フィルムの切断及び(c) 冷延伸からな
る一連の工程を効率化することができる。

[2] ポリブチレンテレフタレートフィルム

上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造された PBT フィルム
15 は、従来のインフレーション成形フィルムと比較して、結晶化度が高く、膜厚の
均一性に優れておりかつ熱収縮率が低い。具体的には、平均膜厚 $8\sim 30\mu\text{m}$ のフ
ィルムの膜厚のバラツキは $\pm 1\sim 3\mu\text{m}$ であり、熱収縮率は MD (長手方向) 及
び TD (幅方向) において 0.4% 以下である。本明細書において、膜厚のバラツキ
とは、PBT フィルムの幅方向における中心部及び両端部の厚さをそれぞれ2点ず
20 つ計6点測定し、そのうちの最大値と最小値との差を算出した値である。この値
が小さいほうが良好な結果であることを意味する。また熱収縮率とは、PBT フィ
ルムを 175°C で10分間暴露したときの MD 及び TD の収縮率をそれぞれ測定し
た値である。]。このためムラの少ない印刷層や金属蒸着層を形成することができ
る。またヒートシール、印刷等の二次加工においてフィルム寸法の変化が少ない。

25 上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造された PBT フィルム
の熱収縮率が上述のように低いのは、バブルのネック部からフロストラインまで
の領域を徐冷し、縦 (MD) 横 (TD) 方向にほぼ均一に延伸するとともに、バブ
ル領域を T_g 超～ $T_g+65^{\circ}\text{C}$ 以下に保持するので、生じたバブルに歪み (ストレス)
が生じていないためと考えられる。

特に空冷インフレーション成形の後に、上記[1]で述べた冷延伸を施した平均膜厚 3 ~ 30 μm のフィルムの膜厚のバラツキは 1 ~ 2 μm であり、冷延伸方向の熱収縮率は 1 % 以下である。しかも何れの方角にも易裂性がなく、機械的強度に優れている。

- 5 上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造された PBT フィルムは、従来のインフレーション成形フィルムと比較して、結晶化度が高い。具体的には、本発明のインフレーション PBT フィルムの X 線法により測定された結晶化度は、35 ~ 40 % である。このため上記[1]で述べた空冷インフレーション成形法により製造された PBT フィルムは、機械的強度に優れている。これに対して、
- 10 融点以上の押出樹脂温度でインフレーション成形された PBT フィルムの結晶化度は通常 30 % 以下である。なおキャスト法により成形された PBT の結晶化度は通常 8 ~ 10 % 程度である。

- 冷延伸を施した PBT フィルムは、冷延伸方向に延在する多数の微細な線状皺を有する。すなわち冷延伸を施した PBT フィルムの表面凹凸を AFM (原子間力
- 15 顕微鏡) により測定すると、凹凸の高低差は通常 50 ~ 500 nm であり、凹凸の幅 (線状皺の頂点同士の間隔) は通常 500 ~ 20000 nm である。但し長手方向及び横方向に逐次二軸冷延伸を行った場合には、先に行った冷延伸による線状皺は消失し、後に行った冷延伸による線状皺のみが PBT フィルムの表面に残る。よって逐次二軸冷延伸を行っても PBT フィルムが有する線状皺の方角は一方角の
- 20 みである。

- 冷延伸を施した PBT フィルムは、上述のような線状皺を有することにより、光を回折 / 散乱させる作用を有する。例えば線状皺を有する PBT フィルムを通して電球等の光源を見ると、線状皺の方角に対して直角方角に、光源を中心として光源とほぼ同じ幅の一本の光の筋が観察される。このため線状皺を有する PBT
- 25 フィルムと光源とを組合せることにより、装飾用のイルミネーションライト等を作製することができる。線状皺を有する PBT フィルムを、線状皺の方角が互いに異なるように複数枚貼合わせた積層フィルムは、光の回折 / 散乱効果が大きい。そのような積層フィルムは、透明フィルム上に電磁波シールド層を積層してなる透明電磁波シールドフィルムの透明フィルムとして有用である可能性がある。さ

らに線状皺を有する PBT フィルムの積層フィルム自体が電磁波シールドフィルムとして利用できる可能性がある。特に線状皺を有する PBT フィルムを波板状に加工したものを複数枚貼合わせ、ハニカム構造体としたものは、光の回折／散乱効果が一層大きく、透明電磁波シールド性も高いと考えられる。そのようなハニカム構造体は防音材としても有用である可能性がある。

[3] 形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム

本発明の形状記憶 PBT 積層フィルムは、(a) 本発明の製造方法により得られる PBT フィルムからなる層と、(b) 紙シート、他の樹脂フィルム及び金属箔からなる群から選ばれた少なくとも一種（以下単に「他のフィルム又はフィルム積層体」という）とを有する。

(I) 層構成

(1) ポリブチレンテレフタレートフィルム

PBT フィルムは上記[1]で述べた製造方法により得られるものを用いる。PBT フィルムの厚さに特に制限はないが、実用的には約 $5 \sim 50 \mu\text{m}$ とするのが好適であり、約 $8 \sim 30 \mu\text{m}$ とするのがより好ましい。

(2) 他のフィルム又はフィルム積層体

(a) 紙シート

形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体に適用する場合、デッドホールド性付与層として紙シートからなる層も有するのが好ましい。紙シート層の紙の種類は限定されず、合成紙も含む。紙シート層の厚さは、約 $60 \sim 110 \text{ g/m}^2$ とするのが好ましく、約 $75 \sim 90 \text{ g/m}^2$ とするのがより好ましい。紙シートの厚さが約 60 g/m^2 未満であると、紙シートの腰が弱すぎて、十分なデッドホールド性を付与することができない。一方、紙シートの厚さを約 110 g/m^2 超にしても、コスト高になるだけで、さらなるデッドホールド性の向上は認められない。

(b) シーラントフィルム

形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体に適用する場合、容器本体の上端フランジ部に熱シールするシーラントフィルムを設ける。シーラントフィルムは、ポリエチレンフィルム、無延伸ポリプロピレンフィルム、アイオノマー樹脂フィルム、ポリスチレンフィルム等により形成することができる。また蓋

体を容器本体から容易に剥離できるように、シーラントフィルムはイージーピール性を有するのが好ましい。そのために、シーラントフィルムは比較的弱い熱接着性を有するのが好ましい。また熱シール用材料として公知のホットメルトも用いることができる。

- 5 シーラントフィルムとして、例えば紙シート側のポリエチレンベースフィルムと、容器本体の上端フランジ部側の低分子量ポリエチレンフィルムとの積層フィルムを使用することができる。このポリエチレンベースフィルムの厚さは約 10～40 μm が好ましく、約 20～30 μm がより好ましい。また低分子量ポリエチレンフィルムの厚さは約 5～20 μm が好ましく、約 7～15 μm がより好ましい。この
- 10 ような積層ポリエチレンフィルムは、例えば 760FD（東レ合成フィルム（株）製）として市販されている。またシーラントフィルムとしては、エチレン-酢酸ビニル共重合体（EVA）とポリエチレンとの混合物からなるフィルムも使用することができる。この混合物からなるフィルムにおいて、ポリエチレンとしては線状低密度ポリエチレン（LLDPE）が好ましい。この混合物からなるフィルムの厚
- 15 さも約 10～40 μm が好ましく、約 20～30 μm がより好ましい。またホットメルト層の厚さは 10～50 μm が好ましく、20～40 μm がより好ましい。

またシーラントフィルムとして、特願 2002-183197 号に開示のものを用いてもよい。特願 2002-183197 号に開示のシーラントフィルムは、エチレンと炭素数 3～18 の α -オレフィンとを共重合して得られ、密度（JIS K6922）が 0.870～0.910

20 g/cm^3 、MFR（JIS K6921、190℃、2.16kg 荷重）が 1～100 $\text{g}/10$ 分である直鎖状エチレン・ α -オレフィン共重合体及びポリスチレンを含む樹脂組成物からなるものである。これにより容器本体のシール面がポリエチレン又はポリスチレンのいずれであっても、本発明の蓋体を熱シールすることにより密封性と易開封性を両立できるマルチシーラント層を形成することができる。

25 (c) 剛性フィルム

形状記憶 PBT 積層フィルムの剛性を高めるために、剛性フィルムを設けることができる。剛性フィルムとしては PET フィルム、二軸延伸ポリプロピレンフィルム（OPP フィルム）、ナイロンフィルム等が挙げられる。PET フィルムとして、一軸配向又は配向度が異なる二軸配向の PET フィルムを用いると、形状記

憶 PBT 積層フィルムが易裂性を要する場合に有利である。一軸配向又は配向度が異なる二軸配向の PET フィルムとして、例えば「エンブレット PC」(ユニチカ(株))が挙げられる。

(d) 遮光性インク層

- 5 形状記憶 PBT 積層フィルムに遮光性が必要な場合、遮光性インク層又は金属箔層を設ける。遮光性インクは、例えばカーボンブラックのような黒色又は暗色の顔料又は染料を含むインクであれば、特に限定的ではない。遮光性インク層を用いる場合、焼却処理するときの環境への悪影響を回避できるとともに、形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体に適用した場合に、密封後に金属
- 10 探知機による金属系異物の探知を行うことができる。これにより、即席食品の安全性をいっそう高めることができるのみならず、金属探知機を利用できるので、検査コストを著しく低減することができる。金属箔層を有する形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体に用いる場合、金属箔としてはアルミニウム箔が好ましい。アルミニウム箔層を使用することにより、優れた遮光性の他にガスバリア性、保香性等も得られる。
- 15

遮光性インク層の厚さはインク中の黒色顔料又は染料の濃度に依存するが、一般に紫外線及び可視光線を十分に遮断できる程度であれば良い。またアルミニウム箔の厚さは $3 \sim 15 \mu\text{m}$ であるのが好ましく、 $7 \sim 12 \mu\text{m}$ であるのがより好ましい。

20 (3) 層構成例

- 図 7～図 10 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体用の包装材料として用いる場合の層構成を例示する。図 7 に示す積層フィルム 7 は、基本構成として PBT フィルム 2 と、紙シート 71 と、シーラントフィルム 72 を有する層構成を示す。PBT フィルム 2 と紙シート 71 との間には接着剤層 74 と押出ラ
- 25 ミネーションされたポリエチレン層(I)73 とからなる接着層(I)があり、紙シート 71 とシーラントフィルム 72 との間には接着剤層 74' と押出ラミネーションされたポリエチレン層(II)73' とからなる接着層(II)がある。図 7 に示す層構成例の場合、PBT フィルム 2 及び接着層(I) (73 及び 74) からなる外側層と、接着層(II) (73' 及び 74') 及びシーラントフィルム 72 からなる内側層との層厚比は、外側層/内

側層=100/35~100/100 であるのが好ましい。これにより、PBT フィルム 2 のカール性及びデッドホールド性を有効に機能させることができる。ここで「外側」及び「内側」とは、形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器等の蓋体として用いた場合における容器に対する外側及び内側であることを意味する。

- 5 図 8 は、形状記憶 PBT 積層フィルムの剛性を高めるために紙シート層 71 とシーラントフィルム 72 との間に剛性フィルム 75 を設けた例を示す。なお図 8 において 73 は押出ラミネーションされたポリエチレン層(III)を示し、74 は接着剤層(III)を示す。

- 10 図 9 は、良好な遮光性を付与するためにポリエチレンテレフタレート層 7 の内側面に遮光性インク層 76 を設けた例を示す。遮光性インク層 76 は、予めポリエチレンテレフタレート (PET) フィルムに印刷しておくのが好ましい。また遮光性インク層 76 を、PBT フィルム 2 の内側に設けたり、紙シート層 71 の一方の面 (例えば紙シート層 71 の内側) に設けたりすることができる。図 10 に示す積層フィルムは、遮光性を付与する層として金属箔層 77 を有する。

- 15 図 11 及び図 12 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを、ゼリー、プリン等の半固体状食品を収容する容器の蓋体用包装材として用いる場合の層構成を例示する。図 11 に示す積層フィルムは、基本構成として PBT フィルム 2 と、剛性フィルム 75 と、シーラントフィルム 72 とを有する。PBT フィルム 2 と剛性フィルム 75 との間には接着剤層 (例えばホットメルト層) 74 があり、紙シート 71 とシーラントフィルム 72 との間には接着剤層 (例えばホットメルト層) 74 がある。図 12 は、良好な遮光性を付与するために剛性フィルム 75 の内側面に遮光性インク層 76 を設けた例を示す。

- 25 半固体状食品を収容する容器に使用する蓋体は、即席食品用容器に用いる蓋体のように注湯後の再封性が要求されないため、デッドホールド性の強い紙シートやアルミニウム箔を有しないことが多い。但し PBT フィルムとポリエチレンフィルムの 2 層のみを接着して積層フィルムを構成すると、PBT フィルムが第一の形状を回復しようとしても、変形がポリエチレンフィルムに吸収され易くなるため、形状回復能が不十分となる恐れがある。よって PBT フィルムとポリエチレンフィルムとを有する形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する場合は、PBT フィ

ルムとポリエチレンフィルムとの間に上記剛性フィルムを設けるのが好ましい。

(II) 形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムの製造方法

以下形状記憶 PBT 積層フィルムの製造方法について図面を参照して詳細に説明する。

5 (1) 第一の製造方法

形状記憶 PBT 積層フィルムの第一の製造方法は、(a) PBT フィルムと前記他のフィルム又はフィルム積層体とを接着し、得られた積層フィルムを、第一の形状に保持しながら前記 PBT の T_g 以下の温度 T_1 で賦形処理（冷間加工）し、(c) 得られた賦形積層フィルムを、前記 T_g を超える温度 T_2 で第二の形状に変形加工し、
10 (c) T_g 以下の温度 T_3 まで冷却することにより第二の形状に固定する工程を含む。

以下、第一の形状としてカール形状、第二の形状として平坦な形状とする場合を例にとって説明する。図 13 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置の一例を示す。PBT フィルム原反を巻いたリール 80 から巻き戻した PBT フィルム 2 は、ガイドロール 130 を経て、グラビアロール 131、131 により一方の面に接着剤（例えばホットメルト）74 を塗布し、乾燥炉 132 で接着剤層を乾燥する。
15 その後、圧力調整ロール 133 を経て、ダイ 134 より押出した熔融ポリエチレン 73 を介して、リール 81 から巻き戻した他のフィルム又はフィルム積層体 82 を接着剤層に重ねながら冷却ロール 135 とゴムロール 135' との間を通す（押出ラミネーション）。得られた積層フィルムを、冷間加工ロール 136 で搬送しながら PBT
20 の T_g 以下の温度 T_1 で賦形処理する。これにより積層フィルムの PBT フィルムにカール性を付与することができる。カール性を付与した積層フィルム（カール性積層フィルム）78 を、ヒーター 138 により、 T_g を超える温度 T_2 で急速に焼きなまししながら、二つのニップロール間 137、137' で平坦に変形加工し、次いで冷却ロール 139 と接触させることにより上記 T_g 以下の温度 T_3 まで冷却する。これ
25 により平坦な形状を固定することができる。その後カール性積層フィルムを、その逆カール向きにリールにより巻き取り、巻きフィルム 83（形状記憶 PBT 積層フィルム 7）とする。本明細書において、カール性とは、形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を反らした時にその状態を維持できるデッドホールド性とは異なり、カール性を付与した温度以上に形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を曝すことにより、

カール性を付与した後に与えられた第二の形状（平坦な形状、逆カール形状等）からカール形状に戻る（形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を反らすことができる）性質を意味する。

5 冷間加工温度 T_1 は、PBT の T_g 以下であることを必須とするが、 35°C 以下であるのが好ましく、 $15\sim 25^{\circ}\text{C}$ であるのがより好ましい。焼きなまし後のカール性積層フィルム 78 を冷却する温度 T_3 は、上記 T_g 以下であることを必須とするが、 $15\sim 25^{\circ}\text{C}$ であるのが好ましい。PBT フィルムは、一般に約 $20\sim 45^{\circ}\text{C}$ の T_g を有する。

10 T_g を超える温度 T_2 で、カール性積層フィルムを平坦に変形加工する焼きなまし処理は、冷間加工により付与したカール性を消失しない程度に行う必要がある。このため温度 T_2 は 45°C 超 $\sim 65^{\circ}\text{C}$ 以下であるのが好ましく、この温度範囲まで急速に加熱した上で変形加工し、 $30\sim 60$ 秒間焼きなます。二つのニップロール間 137, 137' で平坦に保持するためにかかる張力は $5\sim 10\text{kgf/m}$ 幅とする。また温度 T_2 での焼きなまし処理の後、温度 T_3 に急冷するのが好ましい。図 13 では、
15 ヒーター 138, 138' によりカール性積層フィルム 78 の両面から加熱しているが、カール性積層フィルム 78 の PBT フィルム側にのみヒーター 138 を設置してもよい。ヒーター 138 から出る加熱空気を、ノズルを用いてカール性積層フィルム 78 の PBT フィルムに吹き付けてもよい。

20 図 13 に示す例では、カール性積層フィルム 78 を温度 T_3 まで冷却した後、その逆カール向きに（他のフィルム又はフィルム積層体層を内側として）巻き取っているが、冷間加工により付与したカール性を消失せず、かつカール形状の回復を極力抑制するために、巻き取る温度及び巻き取った状態で保管する温度は T_1 付近の温度であるのが好ましい。これにより形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を平坦な状態に保持できるので、巻きフィルム 83（形状記憶 PBT 積層フィルム 7）
25 を巻き戻した時のカール性積層フィルム 78 はほぼ平坦である。

形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器や半固体状食品用容器の蓋体に用いる場合、PBT フィルムに積層する他のフィルム又はフィルム積層体は、形状記憶 PBT 積層フィルムが上記[3](I)(3)で述べたような層構成となるように、予め作製しておく。他のフィルム又はフィルム積層体 82 は、押出ラミネーション法

又はドライラミネーション法のいずれにより形成してもよいが、押出ラミネーション法により形成するのが好ましい。

冷間加工ロール 136 への積層フィルムの巻き掛け方については、図 13 に示すように積層フィルムの巻き込み方向と巻き解き方向とがなす角度 θ_1 を $45 \sim 60^\circ$

5 の範囲となるようにするのが好ましい。これにより PBT フィルム 2 に十分なカール性を付与することができる。角度 θ_1 を所望の値にするには、冷間加工ロール 136 と圧力調整ロール 133' との位置関係を適宜調整すればよい。冷間加工ロール 136 の直径は $20 \sim 80 \text{ cm}$ であるのが好ましい。これにより PBT フィルム 2 に十分なカール性を付与することができる。通常冷間加工ロール 136 の周速は 30
10 $\sim 100 \text{ m/分}$ とする。

PBT フィルム 2 と他のフィルム又はフィルム積層体 82 とを冷却ロール 135, ゴムロール 135' の間を通して接着する時、圧力調整ロール 133 により、PBT フィルム 2 に通常 4 kgf/m 幅以上の張力をかけながら行う。特に PBT フィルム 2 に $10 \sim 20 \text{ kgf/m}$ 幅の張力をかけることにより、PBT フィルム 2 を弾性伸縮可
15 能な伸度に、長手方向に延伸しながら他のフィルム又はフィルム積層体 82 に接着できる。これにより PBT フィルム 2 に弾性復元力を保持させた伸長状態で他のフィルム又はフィルム積層体 82 に接着することができる。弾性復元力を保持した伸長状態とは、PBT フィルム 2 の延伸を固定する力を解いた時に、PBT フィルム 2 が原型に収縮しようとする力を保持している状態のことである。このため
20 形状記憶 PBT 積層フィルム 7 のカール性を一層向上することができる。弾性伸縮可能な伸度とは、一般的に延伸により PBT フィルムに外観上皺が生じない程度に約 $1 \sim 3 \%$ 伸ばした伸度である。

図 13 に示す例では、PBT フィルム 2 の片面のみに他のフィルム又はフィルム積層体 82 を接着しているが、PBT フィルム 2 の両面に他のフィルム又はフィルム積層体 82 を接着した上で、カール性を付与することも可能である。
25

図 14 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置の別の例を示す。なお図 13 に示す実施例と同じ部材又は部分には同じ参照番号を付してある。この例においては、PBT フィルム 2 と他のフィルム又はフィルム積層体 82 とを、ドライラミネーション法により接着すること以外は図 13 に示す例と同じである。接着剤

層を設けた PBT フィルム 2 は、圧力調整ロール 133 を経て、他のフィルム又はフィルム積層体 82 を接着剤層に重ねながら一対の加熱ロール 140, 140 間に通す。但し強い接着強度を要する場合は、図 13 に示す押出ラミネーション法により PBT フィルム 2 と他のフィルム又はフィルム積層体 82 とを接着するのが好ましい。

次に形状記憶 PBT 積層フィルムの第一の形状としてトレイ形状、第二の形状として平坦な形状とする場合の例を説明する。図 15 は、かかる形状記憶 PBT 積層フィルムを製造する装置の一例を示す。なお図 13 に示す実施例と同じ部材又は部分には同じ参照番号を付してある。まず PBT フィルムと他のフィルム又はフィルム積層体とを押出ラミネーション法又はドライラミネーション法により接着し、PBT フィルムの片面又は両面に他のフィルム又はフィルム積層体を有する積層フィルムを形成する。得られた積層フィルム 84 を、圧力調整ロール 133, 133 で送り出し、トレイ形状を付与する押し型 141 を押し当てながら上記温度 T_1 で冷間加工し、押し型 141 の外形に沿った形を断続的に付与する。得られた賦形積層体 85 を、一対の焼きなまし用ロール 142, 142 間に通し、上記温度 T_2 で焼きなますことによりほぼ平坦化し、次いで冷却装置 143, 143 により上記温度 T_3 まで冷却する。ほぼ平坦化した変形積層フィルム 85 を、リール 86 から巻き戻したコート用フィルム 87 と積層化しながら、押し型 141 と同型の巻き取りロール 144 で巻き取り、巻きフィルムとする。これにより押し型 141 の外形に沿った変形は潜在化されて見かけ上変形のない積層フィルムとなる。PBT フィルム 2 に押し型 141 を押し当てながら行う温度 T_1 での冷間加工は 10~60 秒行えばよい。なお図 15 に示す例では、トレイ状の押し型 141 を用いているが、適宜形状記憶させたい所望の形状の押し型を用いることができる。

(2) 第二の製造方法

形状記憶 PBT 積層フィルムの第二の製造方法は、(a) (i) PBT フィルムを含む積層フィルムを第一の形状に保持しながら T_g 超~融点未満の温度 T_4 で賦形処理するか、(ii) PBT フィルムを第一の形状に保持しながら温度 T_4 で賦形処理した後他のフィルム又はフィルム積層体と接着することにより第一の形状を有する積層フィルムを作製し、(b) 得られた賦形積層フィルムを T_g 以下の温度 T_5 まで冷却

して第一の形状に固定し、(c) 次いで前記賦形積層フィルムを、 T_g 超～温度 T_4 未満の温度 T_6 で第二の形状に変形加工した後、(d) T_g 以下の温度 T_7 まで冷却して第二の形状に固定する工程を含む。

- 5 PBT 樹脂の T_g は 22～45℃と室温に近く、 T_g 以上への加熱、 T_g 未満への冷却操作が容易である。しかも融点が約 230℃と高いので、 T_g から融点までの温度範囲が広く、温度 T_4 と温度 T_5 の差を大きくできる。そのため上記(A)～(D)の操作を容易に行うことができる。以下、第一の形状としてカール形状、第二の形状として平坦な形状とする場合を例にとって説明する。

- 10 図 16 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを第二の製造方法により製造する装置の一例を示す。この例では予めカール性を付与した賦形 PBT フィルムに他のフィルム又はフィルム積層体を接着する。PBT フィルム 2 の一面に接着剤 74 を塗布し、乾燥炉 132 で接着剤層を乾燥するまでの工程は、図 13 に示す例と同じである。図 16 に示すように、接着剤層を乾燥した後の PBT フィルム 2 を圧力調整ロール 133 で送り出し、接着層を有しない面を接触面として、賦形用の加熱ロール 15 145 で搬送しながら上記温度 T_4 で処理することによりカール性を付与する。その後、他のフィルム又はフィルム積層体 82 を PBT フィルム 2 の接着層に重ねながら、加熱ロール 145 と、それに当接するロール 145' との間を通すことにより両者を接着する。得られたカール性積層フィルム 78 を、冷却ロール 139 と接触させることにより上記 T_g 以下の温度 T_5 まで冷却し、次いで逆カール向きにリールにより巻き取り、巻きフィルム 83 とする。得られた巻きフィルム 83 を、上記 T_g 20 超～温度 T_4 未満の温度 T_6 で加熱処理し、次いで上記 T_g 以下の温度 T_7 まで冷却することにより形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を得る。巻きフィルム 83 とした上で、温度 T_6 で加熱処理し、次いで温度 T_7 まで冷却することにより上記積層フィルムのカール形状を潜在化し、見かけ上ほぼ平坦な積層フィルムとする。巻きフ
25 イルム 83 を加熱又は冷却する手段に限定はなく、例えば槽中に巻きフィルム 83 を入れ、槽の周囲をヒーターで加熱したり、冷却装置で冷却したりする方法が挙げられる。

加熱ロール 145 における加熱温度 T_4 は、PBT の T_g 超～融点未満の温度であることを必須とするが、75～100℃であるのが好ましく、90～100℃であるのが

より好ましい。冷却ロール 139 における冷却温度 T_5 は上記 T_g 以下の温度であることを必須とするが、 40°C 以下であるのが好ましい。カール性積層フィルム 78 の冷却は、冷却ロール 139 を用いる代わりに冷却空気を用いるものであってもよい。巻きフィルム 83 の加熱温度 T_6 は、上記 T_g 超～温度 T_4 未満であることを必須とするが、 $45\sim 65^{\circ}\text{C}$ であるのが好ましく、 $45\sim 50^{\circ}\text{C}$ であるのがより好ましい。また温度 T_6 での加熱処理は、24 時間程度行うのが好ましい。巻きフィルム 83 を加熱処理した後の冷却温度 T_7 は上記 T_g 以下であることを必須とするが、 40°C 以下であるのが好ましい。図 16 に示す例では第二の形状としてほぼ平坦な形状とするために、カール性積層フィルムの逆カール向きに（他のフィルム又はフィルム積層体を内側として）巻き取っているが、これによりフィルムを効率的に平坦にすることができる。

加熱ロール 145 への PBT フィルム 2 の巻き掛け方については、図 16 に示す PBT フィルム 142 の巻き込み方向と巻き解き方向とがなす角度 θ_2 を $45\sim 60^{\circ}$ の範囲となるようにするのが好ましい。これにより PBT フィルム 2 に十分なカール性を付与することができる。角度 θ_2 を所望の値にするには、加熱ロール 145 と圧力調整ロール 133、133 との位置関係を適宜調整すればよい。加熱ロール 145 の直径は $60\sim 80\text{ cm}$ であるのが好ましい。これにより PBT フィルム 2 に十分なカール性を付与することができる。通常加熱ロール 145 の周速は $30\sim 100\text{ m/分}$ とする。

上記(1)で第一の製造方法について説明したように、PBT フィルム 2 と他のフィルム又はフィルム積層体 82 とを加熱ロール 145 と、当接ロール 145' との間を通すことにより接着する時、一對の圧力調整ロール 133、133 により、PBT フィルム 2 に通常 4 kgf/m 幅以上の張力をかけながら行う。第一の製造方法と同様に、PBT フィルム 2 に $10\sim 20\text{ kgf/m}$ 幅の張力をかけるのが好ましい。

図 17 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを第二の製造方法により製造する装置の別の例を示す。なお図 13 に示す実施例と同じ部材又は部分には同じ参照番号を付してある。この例では、PBT フィルムと他のフィルム又はフィルム積層体とを接着することにより予め積層フィルムを作製した後、その PBT フィルムにカール性を付与する。PBT フィルム 2 と他のフィルム又はフィルム積層体 82 とを一

対の加熱ロール 140, 140 により接着するまでの工程は、図 14 に示す例と同じである。得られた積層フィルムを、加熱ロール 145 で搬送しながら PBT の T_g 超～融点未満の温度 T_4 で賦形する。これにより積層フィルムの PBT フィルムにカー
5 ル性を付与することができる。得られたカール性積層フィルム 78 を、冷却ロー
ル 139 と接触させることにより上記 T_g 以下の温度 T_5 まで冷却し、次いで逆カー
ル向きにリールにより巻き取り、巻きフィルム 83 とする。得られた巻きフィル
ム 83 を、上述のように上記 T_g 超～温度 T_4 未満の温度 T_6 で加熱処理し、次いで
上記 T_g 以下の温度 T_7 まで冷却することにより形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を
得る。

- 10 図 17 に示す実施例において、温度 $T_4 \sim T_7$ に関する要件は図 16 に示す実施例
と同じである。積層フィルム 78 の巻き込み方向と巻き解き方向とがなす角度 θ_3
は $45 \sim 60^\circ$ の範囲であるのが好ましい。図 17 に示す例では、PBT フィルム 2 の
片面のみに他のフィルム又はフィルム積層体 82 を接着しているが、PBT フィル
ム 2 の両面に他のフィルム又はフィルム積層体 82 を接着した上で、カール性を
15 付与することも可能である。

- 第二の製造方法によっても、第一の形状としてトレイ形状とし、第二の形状と
して平坦な形状とした形状記憶 PBT 積層フィルムを製造することができる。そ
の場合の製造装置は図 15 に示すものと同じでよいので、図 15 により説明する。
まず PBT フィルムと他のフィルム又はフィルム積層体とを接着し、PBT フィル
ム 20 ムの片面又は両面に他のフィルム又はフィルム積層体を有する PBT 積層フィル
ムを作製する。得られたフィルム積層体 84 は、一対の圧力調整ロール 133, 133
を経て、トレイ形状を付与する押し型 141 を押し当てながら PBT の T_g 超～融点
未満の温度 T_4 で加熱処理し、押し型 141 の外形に沿った形を断続的に付与する。
得られた賦形積層体 85 を、押し型 141 の後段に設けた冷却用のトレイ状押し型
25 又は冷却空気と接触させて上記 T_g 以下の温度 T_5 まで冷却し、次いで一対の加熱
ロール 142, 142 間に通すことにより、上記 T_g 超～温度 T_4 未満の温度 T_6 で加熱
処理し、次いで冷却装置 143, 143 により上記 T_g 以下の温度 T_7 まで冷却するこ
とにより平坦化する。フィルム積層体 84 に押し型 141 を押し当てながら行う温
度 T_4 での加熱処理は、10～60 秒行えばよい。

(III) 形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム

上記第一の方法により得られる形状記憶 PBT 積層フィルムは、 T_1 以上の温度で形状回復能により実質的に第一の形状を回復する。PBT フィルムが、上記焼きなまし及び冷却工程で第二の形状に固定されても T_1 以上の温度で第一の形状を回復する理由は定かではないが、例えば温度 T_1 での冷間加工で高分子鎖の絡み合いにひずみが保持され、このひずみの大部分は温度 T_2 での短時間の焼きなましでは緩和されないので、 T_1 以上の温度で第一の形状を回復すると考えられる。

上記第二の方法により得られる形状記憶 PBT 積層フィルムは、 T_4 以上の温度で形状回復能により実質的に第一の形状を回復する。PBT フィルムが、上記加熱変形加工及び冷却工程で第二の形状に固定されても、 T_4 以上の温度で第一の形状を回復する理由は定かではないが、例えば温度 T_4 以上ではゴム状領域であるため容易に加熱賦形処理され、温度 T_5 ではガラス状領域であるので変形が固定され、温度 T_6 での加熱変形加工で温度 T_4 での変形の一部が緩和されて第二の形状となるが、大部分の分子鎖の配向は変化しないので、 T_4 以上の温度で第一の形状を回復すると考えられる。

第一の形状を回復することができる形状記憶 PBT 積層フィルムは各種包装材料として有用である。特に上記(2)で述べた方法により製造されるカール形状を記憶した形状記憶 PBT 積層フィルムは、アルミニウム箔等の金属を用いなくても蓋体を十分にカールさせることができるので、即席食品用容器の蓋体に用いる包装材料として好適である。即席食品用容器を製造する際は、形状記憶 PBT 積層フィルムを蓋材シール装置により打ち抜き加工し、得られた蓋体を直ちに容器にヒートシールする。ヒートシール時には、蓋体のシール部が蓋材シール装置のシールヘッドにより通常 $120\sim 160^{\circ}\text{C}$ に加熱されるが、そのとき蓋体のシール部以外の部分にも熱が加わるため、蓋体は T_1 又は T_4 以上の温度条件下で処理される。そのため蓋体はカール形状を回復し、容器にシールされている間は平坦であるが、容器から剥離することによりカール形状を示す。特に上述のように PBT フィルムの弾性復元力を保持した伸長状態で紙シートに接着すると、カール性が一層向上する。

[4] 形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム製蓋体を備えた容器の製

造方法

以下形状記憶 PBT 積層フィルム製蓋体を備えた容器の製造方法について述べる。上記(2)に記載の方法により得られる形状記憶 PBT 積層フィルム 7 は、その製造工程において見かけ上ほぼ平坦とされ、さらに巻きフィルム 83 として保管されているので、これを巻き出す時には見かけ上ほぼ平坦である。しかし形状回復温度が比較的低い場合、保管が長期にわたる場合、夏場の高温期に室温で曝された場合等には、保管時に除々にカール形状が回復していたり、保管時の巻きにより形状記憶によるカール形状とは反対側に反る癖が付いていたりすることがある。

- 10 形状記憶 PBT 積層フィルム製蓋体を備えた容器は、カール形状を記憶させた形状記憶 PBT 積層フィルムを打ち抜き加工し、容器にヒートシールすることにより製造するが、形状記憶 PBT 積層フィルムを巻き出した時にほぼ平坦でないと、容器へのヒートシールができないか、できても蓋体がたわんだ不良品となってしまう。よって蓋体付き容器を製造するにあたり、巻き出した時に平坦でない
- 15 形状記憶 PBT 積層フィルムを、ヒートシールする直前にほぼ平坦にする。

図 18 は、形状記憶 PBT 積層フィルム製蓋体を備えた容器を製造する装置の一例を示す。巻きフィルム 83 から巻き出された形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を、ヒーター 147、147 を用いて、PBT の T_g を超える温度 T_8 で、二つのニップロール 146、146' 間で平坦に保持しながら焼きなまし、見かけ上ほぼ平坦とする。ほぼ平坦とした形状記憶 PBT 積層フィルム 7 を、シールヘッド 151 が上下動する蓋材シール装置 150 により打ち抜き加工し、直ちに容器 170 にヒートシールする。なお必要に応じて容器内に不活性ガスを吹込むことができる。

- 20 但し、温度 T_8 での焼きなましは形状記憶 PBT 積層フィルムが記憶しているカール性を消失しない程度に行う。このため温度 T_8 は $80 \sim 120^\circ\text{C}$ であるのが好ましく、 $90 \sim 100^\circ\text{C}$ であるのがより好ましい。形状記憶 PBT 積層フィルムを温度 T_8 まで急速に加熱し、平坦に保持した上で $30 \sim 60$ 秒間焼きなます。二つのニップロール間 146、146' で平坦に保持するためにかける張力は $5 \sim 10 \text{ kgf/m}$ 幅とする。通常形状記憶 PBT 積層フィルム 7 の走行速度は $30 \sim 100 \text{ m/分}$ とする。図 18 では、ヒーター 147、147 により形状記憶 PBT 積層フィルム 7 の両面から加熱し

ているが、形状記憶 PBT 積層フィルム 7 が片面にのみ PBT フィルムを有する場合、その PBT フィルム側にのみヒーター 147 を設置してもよい。ヒーター 147 から出る加熱空気を、ノズルを用いて形状記憶 PBT 積層フィルム 7 の PBT フィルムに吹き付けてもよい。

5 蓋体の打ち抜き加工と容器 170 へのヒートシールは間欠的に行うため、形状記憶 PBT 積層フィルム 7 がガイドロール 149 と当接ロール 152 との間でたわまず、一定の張力に保たれるように、図 18 に示すように上下動自在のたわみ防止用ロール 148 を設けるのが好ましい。なお図 18 において、88 は蓋体を打ち抜いた後の形状記憶 PBT 積層フィルム 7 からなる巻きフィルムを示す。

10 ヒートシール時には、蓋体のシール部が蓋材シール装置のシールヘッド 151 により通常 120~160℃に加熱されるが、そのとき蓋体のシール部以外の部分にも熱が加わるため、蓋体は T_1 又は T_4 以上の温度条件下で処理される。そのため蓋体はカール形状を回復し、容器にシールされている間は平坦であるが、容器から剥離することによりカール形状を示す。

15 [5] 食品用容器

上記[4]で述べた製造方法により得られる容器の蓋体は、容器から剥離することにより形状記憶によるカール形状を示す。例えば形状記憶 PBT 積層フィルムを、即席食品用容器の蓋体に適用する場合、図 20 に示すように、蓋体 7 のタブ部 160 を持って蓋体 7 を容器本体 170 からマーク 161 まで剥離すると、開封によりできたフラップ部は、アルミニウム層を有さなくても十分にカールしたままに保持される。特に上述のように PBT フィルムの弾性復元力を保持した伸長状態で紙シートに接着してあると、カール性が一層向上する。形状記憶 PBT 積層フィルムを、即席食品用容器の蓋体に適用する場合、その層構成としては上記[3](I)(3)で述べた図 7 ~ 図 10 に示すものが好ましい。

25 後述する線状痕を形成した PBT フィルムを有する形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体に適用した場合、図 20 に示すように、切り口 162, 162 をタブ部 160 の両側に設けることにより、蓋体 7 を容易に部分開封することができる。蓋体 7 のタブ部 160 を指で掴んで蓋体 7 の反対側に引っ張ると、切り口 162, 162 から蓋体 7 は直線的に引き裂かれ、蓋体 7 に開口部 163 ができる。引裂によ

りできたフラップ部 164 は十分にカールしたままに保持される。従ってそのまま熱湯を開口部 163 に注げば良い。

熱湯を注いだ後、フラップ部 164 を元の位置に戻すと、フラップ部 164 の片側又は両側の外縁に紙のギザギザの破断部 164a, 164a があるので、それが開口部 5 163 の紙のギザギザ 163a, 163a の破断部と係合し、フラップ部 164 は持ち上がらなくなる。なおこの場合開口部 163 の面積が従来の全面開封式の開口部より小さいのみならず、フラップ部 164 が開口部 163 に係止した状態にあるので、容器本体 170 を誤って転倒させても、熱湯が漏れる量は低減される。なお図 20 において 180 は乾燥麺を示す。

10 容器本体 170 は、例えば紙、発泡スチロール等の合成樹脂により形成することができる。紙製容器本体の場合、焼却が容易であるのみならず、焼却時に環境に悪影響を及ぼすガスが発生しないという利点がある。また発泡スチロール製容器本体の場合、保温性に優れているという利点がある。容器本体 170 の形状は図示のものに限定されず、内容物の種類に応じて種々変更することができる。

15 図 21 及び図 22 は、形状記憶 PBT 積層フィルムを、ゼリー、プリン等の半固体状食品を収容する容器の蓋体に用いた例を示す。形状記憶 PBT 積層フィルムを、半固体状食品用容器の蓋体に適用する場合、その層構成としては上記[3](I)(3)で述べた図 11 及び図 12 に示すものが代表的である。図 21 に示すように、密封状態において、容器 170 にシールされている蓋体 7 は平坦である。しかし蓋体 7 20 は容器 170 にヒートシールされる時にカール形状を回復している（但し見かけ上は平坦である）ので、紙シートやアルミニウム箔を有しない形状記憶 PBT 積層フィルムからなる蓋体 7 は、容器 170 から剥離されることにより、図 22 に示すように形状記憶によって強くカールする。容器本体 170 は、例えばポリプロピレン、ポリエチレン等の合成樹脂により形成することができる。容器本体 170 の形状 25 は図示のものに限定されず、内容物の種類に応じて種々変更することができる。このような強いカール性を有する蓋体は、コーヒーミルク等のポーションパック用の蓋体等の用途にも好適である。

上記[3](II)で述べたトレイ形状を記憶させた形状記憶 PBT 積層フィルムを、平坦なまま各トレイ形状単位長さ毎にカットすることにより、食品用トレイとして

使用することができる。例えば図 23 に示すように、得られた食品用トレイ 153 に即席冷凍食品 154 を乗せた後、包装用フィルム 155 により包装し、包装商品 156 とする。図 23 に示すように、包装商品 156 は食するために電子レンジ 157 等により加熱するが、この時上記温度 T_1 又は T_4 以上の温度で適度な時間加熱処理することにより、食品用トレイ 153 は押し型 141 により形成されたトレイ形状を回復する。このように形状記憶 PBT 積層フィルムを食品用トレイ 153 に適用すると、包装商品 156 の状態ではほぼ平坦なので容積が小さく、輸送や陳列に便利であり、加熱処理によりトレイ形状を回復し、食し易い状態にできる便利さがある。

- 10 食品用トレイ 153 の包装用フィルム 155 には、後述する方法により、少なくとも一面に多数の実質的に平行な線状痕が形成されているのが好ましい。これにより包装用フィルム 155 は、その配向性に関わらず一方向への直線的易裂性を有し、任意の位置から線状痕に沿って直線的に裂くことができる。よって食する際に、包装用フィルム 155 を容易に部分開封することができる。かかる線状痕は、フィルムを貫通していないので、包装用フィルム 155 は線状痕形成後においてもガスバリア性に優れている。

[6] フィルムへの線状痕形成

- 形状記憶 PBT 積層フィルムに直線的易裂性を付与するために、PBT フィルム、剛性フィルム及びシーラントフィルムのうちの少なくとも一つの全面に対して、以下に述べる方法により多数の実質的に平行な線状痕を形成しておくのが好ましい。これにより形状記憶 PBT 積層フィルムを容易に直線的に裂くことができるので、例えば形状記憶 PBT 積層フィルムを即席食品用容器の蓋体用の包装材として用いた場合に蓋体を部分開封することが可能となる。かかる線状痕は、特に PBT フィルムに形成するのが好ましい。線状痕は、連続走行するフィルムを、多数の微細な突起を有する線状痕形成手段に摺接させることにより形成することができる。以下、線状痕の形成方法を、図面を参照して詳細に説明する。

(I) フィルムに進行方向の線状痕を形成する場合

図 24 は、フィルム 301 の進行方向に線状痕を形成する装置の一例を示す。図 24 は、表面に多数の微細な突起を有するロール（以下「パターン・ロール」とい

う) 302 を線状痕形成手段として用い、フィルム押しつけ手段として空気を吹き付けることができるノズル 303 を用いた例を示す。フィルム原反を巻いたリール 311 から巻き戻されたフィルム 301 を、ニップロール 312 を経て、パターン・ロール 302 に摺接させることにより線状痕を形成し、得られた直線的易裂性フィルムはニップロール 313、ガイドロール 314 及び 315 を経て、巻き取りリール 316 により巻き取る。

パターン・ロール 302 は、図 25 に示すようにその回転軸がフィルム 301 の幅方向と平行となるように定位置に固定されており、軸線方向長さがフィルム 301 の幅より長く、フィルム 301 の幅全体がパターン・ロールに摺接するようになっている。

張力調整ロールとしてニップロール 312 及び 313 をパターン・ロール 302 の前後に設けることよりパターン・ロール 302 を走行するフィルム 301 に張力を与えられるようになっている。さらに図 25 に示すように、フィルム 301 がパターン・ロール 302 に摺接する位置において、パターン・ロール 302 の反対側からノズル 303 により所定の風圧を伴った空気を吹き付けることにより、フィルム 301 がパターン・ロール 302 に摺接する面（以下特段の断りがない限り「ロール摺接面」と呼ぶ。）に均一な接触力をかけることができる。これによりフィルム面に均一な線状痕を形成することができる。ノズル 303 を用いてパターン・ロール 302 にフィルム 301 を押し付けることにより、ロール摺接面でのフィルム 301 の厚さむらによる接触不均一性を緩和することができる。

パターン・ロール 302 は、フィルム 301 の進行速度より遅い周速で、フィルム 301 の進行方向と逆方向に回転させるのが好ましい。これによりフィルム皺の発生を防止できるとともに、線状痕の形成に伴い発生する削り屑がパターン・ロール 302 の表面に溜まるのを防止できるので、適切な長さ及び深さの線状痕を形成することができる。本発明においてフィルム 301 の進行速度は 10～500 m/分とするのが好ましい。またパターン・ロール 302 の周速（フィルム 301 の進行方向と逆方向に回転させる速度）は、1～50 m/分とするのが好ましい。

パターン・ロール 302 としては、例えば特開 2002-59487 号に記載のものを用いることができる。これは金属製ロール本体の表面に多数のモース硬度 5 以上の

微粒子を電着法によるか、有機系もしくは無機系の結合剤により付着させた構造を有する。金属製ロール本体は、例えば鉄、鉄合金等から形成される。金属製ロール本体の表面をニッケルめっき層又はクロムめっき層により被覆するのが好ましい。モース硬度 5 以上の微粒子としては、例えばタングステンカーバイト等の

5 超硬合金粒子、炭化ケイ素粒子、炭化ホウ素粒子、サファイア粒子、立方晶窒化ホウ素 (CBN) 粒子、天然又は合成のダイヤモンド微粒子等を挙げることができる。特に硬度、強度等が大きい合成ダイヤモンド微粒子が望ましい。微粒子の粒径は形成する線状痕の深さあるいは幅に応じて適宜選択する。本発明において、微粒子の粒径は $10 \sim 100 \mu\text{m}$ で、粒径のばらつきが 5 % 以下のものが望ましい。

- 10 ロール本体の表面に微粒子を付着させる程度は、形成する線状痕同士の間隔が所望の程度となるように、適宜選択する。均一な線状痕を得るために、微粒子はロール本体表面に 50% 以上付着させることが望ましい。パターン・ロール 302 の具体例としては、鉄製のロール本体表面に多数の合成ダイヤモンド微粒子が 50% 以上の面積率でニッケル系の電着層を介して結合・固定されているものが挙げられる。
- 15 パターン・ロール 302 の外径は $2 \sim 20 \text{ cm}$ であるのが好ましく、 $3 \sim 10 \text{ cm}$ であるのがより好ましい。

パターン・ロール 302 としては、金属製ロール本体の表面に金属製針が微小間隔で縦横に規則的に埋め込まれている針歯ロールを用いることもできる。また線状痕形成手段として、パターン・ロール 302 の他に、プレート状本体の表面に、

20 上記のようなモース硬度が 5 以上の微粒子を表面に多数有するパターン・プレートをを用いてもよい。

- 図 26 は、フィルム 301 がパターン・ロール 302 と摺接し、線状痕が形成される様子を示す。例えばパターン・ロール 302 の表面上の微粒子 304 のうち少なくとも一つの微粒子の角部がロール摺接面に切り込んでいくが、上述のようにフィルム 301 の進行速度はパターン・ロール 302 が逆回転する周速より速いので、切り込んだ微粒子 304 の角部がロール摺接面から離れるまで一本の長い線状痕が形成される。
- 25

空気吹き付け手段としては、図 27(a) に示すように帯状の吹き出し口 331 を有するノズル (図 24~26 に示すものと同じもの) に代えて、図 27(b) に示すように

- 複数の吹き出し口 331 を有するノズルを用いてもよい。また図 27(c)に示すようにフード 332 を有するノズルを用いてパターン・ロール 302 を覆う形で圧縮空気を吹き付けると、吹き出し口 331 から吹き出す圧縮空気が、フィルム 301 とパターン・ロール 302 とが摺接する位置に到達するまでに拡散しにくいので、ロール
- 5 摺接面におけるフィルム 301 とパターン・ロール 302 の接触力を一層均一にすることができる。このような空気吹き付け手段により吹き付ける圧縮空気流の圧力は、4.9～490 kPa (0.05～5 kgf/cm²) であるのが好ましい。これによりロール摺接面におけるフィルム 301 とパターン・ロール 302 の接触力を均一にすることができる。より好ましい圧縮空気流の圧力は 9.8～196 kPa (0.1～2 kgf/cm²)
- 10 である。また吹き出し口 331 からロール摺接面までの距離は 10～50 cm であるのが好ましい。圧縮空気は、少なくともロール摺接面をカバーする範囲に均一に当たればよい。しかし、必要以上にブローア又はノズルの吹き出し口 331 を大きくすると、適切な風圧を得るために要する圧縮空気の量が多くなるため好ましくない。
- 15 定位置に固定したパターン・ロール 302 へのフィルム 301 の巻き掛け方については、図 27(c)に示すフィルム 301 の巻き込み方向と巻き解き方向とがなす角度 θ を 60～170° の範囲となるようにするのが好ましい。これにより線状痕の長さ及び深さが調整し易くなる。角度 θ は 90～150° の範囲となるようにするのがより好ましい。角度 θ を所望の値にするには、パターン・ロール 302 の高さ位置を
- 20 変更する等により、パターン・ロール 302 とニップロール 312 及び 313 との位置関係を適宜調整すればよい。またパターン・ロール 302 へのフィルム 301 の巻き掛け方及び外径に応じて、ニップロール 312 及び 313 によりフィルム 301 に与える張力とノズル 303 により与える風圧とを適宜調整し、所望の長さ及び深さの線状痕が得られるようにする。本発明において、ニップロール 312 及び 313 に
- 25 よりフィルムに掛ける張力（幅当りの張力）については、0.01～5 kgf/cm 幅の範囲となるようにするのが好ましい。

空気吹き付け手段に代えて、ロール摺接面の反対側の面にブラシを摺接させることにより、ロール摺接面に均一な接触力をかけることができる。ブラシの毛材は、ブラシとフィルム 301 との摺接面（以下特段の断りがない限り「ブラシ摺接

面」と呼ぶ)において、フィルム 301 の進行速度より遅い速度で、フィルム 301 の進行方向と逆方向に移動可能であるのが好ましい。このためブラシとして、図 28 に示すように、ブラシ軸 (回転軸) の周りに放射状に多数の毛材を配した回転ロールブラシ 305 を用い、その回転軸がフィルム 301 の幅方向と平行となるよう

5 に定位置に固定し、軸線方向長さをフィルム 301 の幅より長くし、フィルム 301 の幅全体がブラシに摺接するようにするのが好ましい。

回転ロールブラシ 305 の外径は、5～10 cm であるのが好ましい。回転ロールブラシ 305 の毛材 351 に関して、屈曲回復率は 70%以上であるのが好ましく、直径は 0.1～1.8 mm であるのが好ましく、長さは 1～5 cm であるのが好ましい。

- 10 回転ロールブラシ 305 の毛材 351 のブラシ摺接面における密度は 100～500 本/cm² であるのが好ましい。本明細書において、「屈曲回復率」とは、長さ約 26 cm の毛材繊維を交差させた 2 本 1 組のチェーン状のループを作り、上方ループを止め金に固定し、下方ループに荷重 (毛材繊維の繊度 [デニール] の 1/2 の荷重 [g] の重り) を 3 分間かけることにより、ループの交差点で形成された 1 対の松葉状
- 15 に屈曲したサンプルを、長さ約 3 cm にカットして採取し、60 分間放置した後測定した開角度 (θ_4) から、式: $\theta_4/180 \times 100$ (%) に従って計算したものである。毛材 351 の先端の形状に特に制限はないが、略 U 字形状又はテーパ形状であるのが好ましい。毛材 351 の材質にも特に制限はないが、ポリプロピレン、ナイロン、アクリル、ポリエチレン等の合成樹脂が好ましい。

- 20 回転ロールブラシ 305 は、ブラシ摺接面における圧力が 1～490 kPa (0.01～5 kgf/cm²) となるようにフィルム 301 に摺接するのが好ましい。回転ロールブラシ 305 の周速 (フィルム 301 の進行方向と逆方向に回転させる速度) は、1～50 m/分とするのが好ましい。

- 線状痕の長さ及び深さは、所望の直線的易裂性の度合いを満たすように、フィルム 301 の走行速度、パターン・ロール 302 の周速、ダイヤモンド微粒子 304 の粒子径、パターン・ロールの外径、ノズル 303 の風圧、回転ロールブラシ 305 の圧力、ニップロール 312 及び 313 により与える張力等を適宜設定することにより調整する。
- 25

(II) フィルムに斜めの線状痕を形成する場合

図 29 は、フィルム 301 の進行方向に対して斜めの線状痕を形成する装置の一例を示す。図 24 と同じ部材又は部分には同じ参照番号を付してある。図 29 に示す装置は、線状痕形成手段として多数の小さなパターン・ロール 321 を接続したパターン・エンドレスベルト 306 を備えるとともに、フィルム押しつけ手段として

5 エンドレスベルトに多数の毛材 371 を配したエンドレスブラシ 307 を備えている。図 30(a)は、図 29 に示す装置において、パターン・エンドレスベルト 306 をフィルム 301 の幅方向に回転させる様子を示す部分拡大平面図であり、図 30(b)は図 30(a)において D 方向から見た概略断面図である。

パターン・エンドレスベルト 306 を図 30(a)及び(b)のようにフィルム 301 の幅

10 方向に回転させ、小パターン・ロール 321 を連続的にフィルム 301 に摺接させることにより、フィルム 301 の進行方向に対して斜めの線状痕を形成することができる。パターン・エンドレスベルト 306 を構成するパターン・ロール 321 の数を多くし、パターン・ロール 321 の密度を高くするのが好ましい。小パターン・ロール 321 の軸線方向長さ及び外径は 5～10 cm であるのが好ましい。

15 斜め方向の線状痕のフィルム進行方向に対する角度は、パターン・エンドレスベルト 306 の周速とフィルム 301 の走行速度を適宜調整することにより変更可能である。通常パターン・エンドレスベルト 306 の周速を 1～100 m/分とする。小パターン・ロール 321 は、ロール摺接面においてパターン・エンドレスベルト 306 の進行方向に対して反対方向に回転させる。その周速は、上記(I)で述べたパターン・ロール 302 の場合と同じく 1～50 m/分である。

20

エンドレスブラシ 307 は、その毛材 371 がフィルム 301 に摺接しながら移動する方向と、パターン・エンドレスベルト 306 がフィルム 301 に摺接しながら移動する方向とが逆となるように回転させるのが好ましい。よって回転方向に関して、エンドレスブラシ 307 及びパターン・エンドレスベルト 306 を同じにする。

25 エンドレスブラシ 307 の毛材 371 の長さは 4～8 cm であるのが好ましい。エンドレスブラシ 307 の毛材 371 の屈曲回復率、直径、ブラシ摺接面における密度、先端形状及び材質に関する好ましい要件は、上記(I)で述べた回転ロールブラシ 305 の場合と同じである。エンドレスブラシ 307 のブラシ摺接面における圧力は、上記(I)で述べた回転ロールブラシ 305 の場合と同じく 1～490 kPa (0.01～5

kgf/cm²) である。エンドレスブラシ 307 をフィルム 301 に摺接させる圧力は、高さ調節ハンドル 373 を回転し、エンドレスブラシ 307 の上下位置を適宜設定することにより調節することができる。エンドレスブラシ 307 の周速は、1 ~ 50 m/分とするのが好ましい。エンドレスブラシ 307 の周速は、モーター 374 の回転速度を適宜設定することにより調節することができる。

パターン・エンドレスベルト 306 及びエンドレスブラシ 307 は、進行方向長さをフィルム 301 の幅より長くし、フィルム 301 の幅全体がパターン・エンドレスベルト 306 及びエンドレスブラシ 307 に摺接するようにするのが好ましい。

図 31 は、フィルム 301 の進行方向に対して斜めの線状痕を形成する装置の別の例を示す。図 24 と同じ部材又は部分には同じ参照番号を付してある。図 31 に示す装置は、線状痕形成手段として、図 32 に示すように多数の小さなパターン・ロール 322a がガイドレール 381a (支持体) に並列に取り付けられてなるロールトレイン 308a、及び多数の小さなパターン・ロール 322b がガイドレール 381b (支持体) に並列に取り付けられてなるロールトレイン 308b を備えている。

パターン・ロール 322a 及び 322b を支える支持軸 391a 及び 391b は昇降自在であり、かつロールトレイン 308a 及び 308b はそれぞれガイドレール 381a 及び 381b に沿ってフィルム 301 の幅方向に直線的に移動できる。昇降自在の支持軸 391a 及び 391b 並びにガイドレール 381a 及び 381b からなるガイド手段により、ロールトレイン 308a 及び 308b はフィルム 301 の幅方向に独立して移動することができる。このためロールトレイン 308a 及び 308b をフィルム 301 の一端側から他端側にフィルム 301 と摺接させながら移動させ、他端側に移動し終わった後にフィルム 301 から離隔して元の位置まで戻るサイクルを繰返させ、その際フィルム 301 の幅全体にいずれかのロールトレインが常に摺接するようにロールトレイン 308a 及び 308b の移動を制御することにより、フィルムの進行方向に対して斜めの線状痕を形成することができる。ガイド手段としては、支持軸 391a 及び 391b をガイドレール 381a 及び 381b に対して昇降しないようにする代わりに、ガイドレール 381a 及び 381b を昇降自在とする構成であってもよい。

パターン・ロール 322a 及び 322b の軸線方向長さ及び外径は 5 ~ 10 cm 程度でよい。パターン・ロール 322a 及び 322b のパターン・ロール同士の隙間は、少な

くともパターン・ロールのロール幅より狭くし、パターン・ロールの密度を高くするのが好ましい。ロールトレイン 308a 及び 308b のそれぞれの長さはフィルム 301 の幅より長くする。

図 31 に示す装置には、フィルム押しつけ手段として、図 29 に示す装置が有するものと同じエンドレスブラシ 307a 及び 307b が、フィルム 301 を挟んでロールトレイン 308a 及び 308b に対してそれぞれ平行に設けられている。但しエンドレスブラシ 307a 及び 307b を支える支持部材 372, 372 は昇降自在である。このためエンドレスブラシ 307a がロールトレイン 308a と同時にフィルム 301 に摺接するように、その昇降を制御し、かつエンドレスブラシ 307b がロールトレイン 308b と同時にフィルム 301 に摺接するように、その昇降を制御することにより、ロール摺接面に常に一定の接触力を与えることができる。

エンドレスブラシ 307a 及び 307b は、その毛材がフィルム 301 に摺接しながら移動する方向と、ロールトレイン 308a 及び 308b がフィルム 301 に摺接しながら移動する方向とが逆となるように回転させるのが好ましい。エンドレスブラシ 307a 及び 307b の毛材の屈曲回復率、直径、長さ、ブラシ摺接面における密度、先端形状及び材質に関する好ましい要件、並びにエンドレスブラシ 307a 及び 307b のブラシ摺接面における圧力、エンドレスブラシ 307a 及び 307b の周速は、図 29 に示す装置が有するエンドレスブラシ 307 の場合と同じである。

斜め方向の線状痕のフィルム進行方向に対する角度は、ロールトレイン 308a 及び 308b を摺接させる速度とフィルム 301 の走行速度を適宜調整することにより変更可能である。またパターン・ロール 322a 及び 322b は、ロール摺接面においてロールトレイン 308a 及び 308b の進行に対して反対方向に回転させる。その周速は、上記(I)で述べたパターン・ロール 302 の場合と同じでよい。

図 33(a)及び図 33(b)はフィルム 301 の進行方向に対して斜めの線状痕を形成する装置の別の例を示す。この例では、軸線方向長さがフィルム 301 の幅より長い 2 つのパターン・ロール 323a 及び 323b をフィルム 301 の進行方向において前後に平行に設置している。パターン・ロール 323a 及び 323b の軸線方向長さはフィルム 301 の幅の 2 倍以上であるのが好ましい。

パターン・ロール 323a 及び 323b を支える支持軸 392a 及び 392b は昇降自在

であり、かつパターン・ロール 323a 及び 323b はそれぞれガイドレール 382a 及び 382b に沿ってフィルム 301 の幅方向に直線的に移動できる。昇降自在の 392a 及び 392b 並びにガイドレール 382a 及び 382b からなるガイド手段により、パターン・ロール 323a 及び 323b はフィルム 301 の幅方向に独立して移動することができる。このためパターン・ロール 323a 及び 323b をフィルム 301 の一端側から他端側にフィルム 301 と摺接させながら移動させ、他端側に移動し終わった後にフィルム 301 から離隔して元の位置まで戻るサイクルを繰返させ、その際フィルム 301 の幅全体にいずれかのパターン・ロールが常に摺接するようにパターン・ロール 323a 及び 323b の移動を制御することにより、フィルムの進行方向に対して斜めの線状痕を形成することができる。斜め方向の線状痕のフィルム進行方向に対する角度は、パターン・ロール 323a 及び 323b を摺接させる速度とフィルム 301 の走行速度を適宜調整することにより変更可能である。

図 33 に示す装置には、フィルム押しつけ手段として、図 31 に示す装置が有するものと同じく昇降自在のエンドレスブラシ 307a 及び 307b が、フィルム 301 を挟んでパターン・ロール 323a 及び 323b に対してそれぞれ平行に設けられている。

なお図 29～図 33 に示す装置では、フィルム押しつけ手段として、エンドレスブラシを備えているが、上記(I)で述べた空気吹き付け手段を備えてもよい。

(III) フィルムに幅方向の線状痕を形成する場合

図 34 は、フィルム 301 に幅方向の線状痕を形成する装置の一例を示す。図 29 と同じ部材又は部分には同じ参照番号を付してある。図 34 に示す装置は、パターン・エンドレスベルト 306 が、フィルムの進行方向に対して斜めに設けられている以外は、図 29 及び図 30 に示す装置と同じである（エンドレスブラシは図示せず）。図 34 に示す構成の装置を用いて、フィルム 301 の進行速度、フィルム 301 の進行方向に対するパターン・エンドレスベルト 306 の角度、パターン・エンドレスベルト 306 の周速等の運転条件を適宜設定することにより、フィルム 301 の幅方向への線状痕を形成することができる。

図 35 は、フィルム 301 に幅方向の線状痕を形成する装置の別の例を示す。この例では、多数の小さなパターン・ロール 321a を接続したパターン・エンドレ

スベルト 306a、及び多数の小さなパターン・ロール 321b を接続したパターン・
エンドレスベルト 306b が、フィルム 301 の中心線 317 を対称軸として対称的に、
かつフィルムの進行方向に対して斜めに設けられている。フィルム押しつけ手段
として、図 29 に示す装置に関して述べたのと同じエンドレスブラシを、フィル
ム 301 を挟んでパターン・エンドレスベルト 306a 及び 306b とそれぞれ平行に
設けるのが好ましい（図示せず）。

図 35 に示す構成の装置を用いて、フィルム 301 の進行速度、フィルム 301 の
中心線 317 に対するパターン・エンドレスベルト 306a 及び 306b の角度、パタ
ーン・エンドレスベルト 306a 及び 306b の周速等の運転条件を適宜設定すること
により、フィルム 301 の幅方向への線状痕を形成することができる。

図 36 は、フィルム 301 の幅方向に線状痕を形成する装置の別の例を示す。図
36 に示す装置は、図 32 に示すロールトレイン 308a 及び 308b が、フィルム 301
の幅方向に対して斜めに設けられている以外は、図 32 に示す装置と同じである
（エンドレスブラシは図示せず）。図 36 に示す構成の装置を用いて、フィルム 301
の進行速度、フィルム 301 の進行方向に対するロールトレイン 308a 及び 308b
の角度、ロールトレイン 308a 及び 308b の摺接速度等の運転条件を適宜設定する
ことにより、フィルム 301 の幅方向への線状痕を形成することができる。

図 37(a)及び図 37(b)は、フィルム 301 の幅方向に線状痕を形成する装置の別の
例を示す。図 37(b)は図 37(a)に示す装置の左側面を示す（図 37(a)における F 方
向から見た図である）。この例では、フィルム 301 の進行方向に対して傾斜した
軸線方向を有する 2 つのパターン・ロール 324a 及び 324b を備えている。パター
ン・ロール 324a 及び 324b の軸線方向長さは少なくともフィルム 301 の幅の 2
倍以上であるのが好ましい。

パターン・ロール 324a 及び 324b を支える支持軸 393a 及び 393b は昇降自在
であり、かつパターン・ロール 324a 及び 324b はそれぞれガイドレール 383a 及
び 383b に沿ってフィルム 301 の中心線 317 に対して所定の角度を保ちながら直
線的に移動できる。昇降自在の 393a 及び 393b 並びにガイドレール 383a 及び
383b からなるガイド手段により、パターン・ロール 324a 及び 324b はフィルム
301 の中心線 317 に対して所定の角度を保ちながら独立して移動することができ

る。軸線方向長さについて、パターン・ロール 324b はパターン・ロール 324a より長いので、パターン・ロール 324a 及び 324b は互いに逆方向への進行時にすれ違うことが可能である。このためパターン・ロール 324a 及び 324b をフィルム 301 の一端側から他端側にフィルム 301 と摺接させながら移動させ、他端側に移動し終わった後にフィルム 301 から離隔して元の位置まで戻るサイクルを繰返させ、その際フィルム 301 の幅全体にいずれかのパターン・ロールが常に摺接するようにパターン・ロール 324a 及び 324b の移動を制御することにより、フィルムの進行方向に対して幅方向の線状痕を形成することができる。

フィルム押しつけ手段として、図 37(b)に示すように、昇降自在でかつ直線移動可能な支持軸 352a 及び 352b にそれぞれ支持された回転ロールブラシ 305a 及び 305b を設け、パターン・ロール 383a 及び 383b のフィルム 301 とのロール摺接面の移動に合わせて移動させるようにする。また軸線方向長さについて、回転ロールブラシ 305a 及び 305b の一方を他方より長くすることにより回転ロールブラシ 305a 及び 305b は互いに逆方向への進行時にすれ違うことが可能である。これによりパターン・ロール 383a 又は 383b のフィルム 301 とのロール摺接面に対して、常に接触力をかけることができる。回転ロールブラシ 305a 及び 305b の毛材 351 の屈曲回復率、直径、長さ、ブラシ摺接面における密度、先端形状及び材質に関する好ましい要件は、上記(I)で述べた回転ロールブラシ 305 の場合と同じである。

なお図 34～図 37 に示す装置では、運転条件等の設定を適宜変更することにより、フィルム 301 の進行方向に対して斜めの線状痕を形成することもできる。また図 34～図 37 に示す装置に関しては、フィルム押しつけ手段として、エンドレスブラシを備えていることを述べたが、上記(I)で述べた空気吹き付け手段を備えてもよい。

以上述べた方法により製造される直線的易裂性を有するフィルムにおいて、上記線状痕の深さはフィルム厚さの 1～40%であるのが好ましい。これによりフィルム強度と良好な直線的易裂性を両立できる。線状痕は、その深さが 0.1～10 μm であるのが好ましく、その幅が 0.1～10 μm であるのが好ましく、線状痕同士の間隔は 10～200 μm であるのが好ましい。

[7] フィルムへの微細孔加工

形状記憶 PBT 積層フィルムに直線的易裂性を付与するために、PBT フィルム、剛性フィルム及びシーラントフィルムのうちの少なくとも一つの全面に微細な貫通孔を形成してもよい。微細な貫通孔は、特にシーラントフィルムに形成するのが好ましい。微細孔は $0.5 \sim 100 \mu\text{m}$ の平均開口径を有し、かつ分布密度は約 500 個/ cm^2 以上であるのが好ましい。微細孔の分布密度が約 500 個/ cm^2 未満であると、易裂性が不十分である。なお微細孔密度の上限は技術的に可能な限りいくらでも良く、特に制限されない。

フィルムに微細孔を形成するには、例えば日本国特許第 2071842 号や特開 2002-059487 号に開示の方法を採用することができる。例えば日本国特許第 2071842 号に開示の方法を利用すると、鋭い角部を有する多数のモース硬度 5 以上の粒子が表面に付着した第一ロール（上記[7]で説明したパターン・ロール 302 と同様のもの）と、表面が平滑な第二ロールとの間にフィルムを通過させるとともに、各ロール間を通過するフィルムへの押圧力を各ロールと接触するフィルム面全体に亘って均一となるように調節することにより、第一ロール表面の多数の粒子の鋭い角部でフィルムに上記微細孔を多数形成することができる。第二ロールとしては、例えば鉄系ロール、表面に Ni メッキ、Cr メッキ等を施した鉄系ロール、ステンレス系ロール、特殊鋼ロール等を用いることができる。

[8] セラミック又は金属の蒸着

形状記憶 PBT 積層フィルムのガスバリア性向上を目的として、PBT フィルムには金属、セラミック等を蒸着したり、樹脂をコーティングしたりすることができる。蒸着するセラミックの具体例としてシリカ、アルミナ等が挙げられる。金属、セラミック等の蒸着は、公知の方法により行うことができる。

[9] 機能性ポリブチレンテレフタレートフィルム

本発明の PBT フィルムに、以下に述べる線状痕及び／又は微細孔を形成することにより、包装材として一層優れた機能を付与することができる。

(II) 直線的易裂性ポリブチレンテレフタレートフィルム

直線的易裂性 PBT フィルムは、上記[6]で述べた方法に従って PBT フィルムの少なくとも一面に多数の実質的に平行な線状痕が形成されたものである。このた

め原料フィルムの配向性に関わらず一方向への直線的易裂性を有し、任意の位置から線状痕に沿って直線的に裂くことができる。直線的易裂性 PBT フィルムを用いて包装袋を製造すると、一定の幅を維持しながら先細りのない帯状に開封できる。また直線的易裂性 PBT フィルムは線状痕が貫通していないので、ガスバリア性に優れている。

直線的易裂性 PBT フィルムの線状痕の深さはフィルム厚さの 1~40 %であるのが好ましい。これによりフィルム強度と良好な直線的易裂性を両立できる。線状痕は、その深さが 0.1~10 μm であるのが好ましく、その幅が 0.1~10 μm であるのが好ましく、線状痕同士の間隔は 10~200 μm であるのが好ましい。

10 直線的易裂性 PBT フィルムの厚さは約 5~50 μm であるのが好ましく、約 10~20 μm であるのがより好ましく、例えば約 12 μm である。約 5~50 μm の厚さであれば、十分な保香性及びガスバリア性を有するとともに、光沢性及び印刷特性も良好である。

また直線的易裂性 PBT フィルムに金属、セラミック等を蒸着したり、樹脂をコーティングしたりすることができる。具体例としてシリカ、アルミナ等を蒸着することができる。このようなセラミックを蒸着することにより、直線的易裂性 PBT フィルムのガスバリア性が向上する。金属、セラミック等の蒸着は、公知の方法により行うことができる。金属、セラミック等はフィルムの線状痕形成面又は非形成面のどちらに蒸着してもよい。本発明の製造方法により得られる PBT
20 フィルムは、熱収縮率が小さいので、蒸着層を形成した場合に、蒸着層が安定する。

また直線的易裂性 PBT フィルムは、汎用ポリオレフィン及び特殊ポリオレフィンからなる層を備えた積層フィルムとすることができる。具体的には、低密度ポリエチレン (LDPE)、中密度ポリエチレン (MDPE)、高密度ポリエチレン
25 (HDPE)、無延伸ポリプロピレン (CPP)、直鎖状低密度ポリエチレン (L-LDPE)、超低密度ポリエチレン (VLDPE)、エチレン・酢酸ビニル共重合体 (EVA)、エチレン・アクリル酸共重合体 (EAA)、エチレン・メタクリル酸共重合体 (EMAA)、エチレン・エチルアクリレート共重合体 (EEA)、エチレン・メチルメタクリレート共重合体 (EMMA)、エチレン・アクリル酸メチル共重合体 (EMA)、アイ

オノマー（IO）等である。さらに防湿性、ガスバリア性を高める目的で中間層にアルミニウム箔、シリカ蒸着ポリエチレンテレフタレートフィルム、アルミナ蒸着ポリエチレンテレフタレートフィルム等を備えたものが好ましい。

- 5 また積層フィルムにする場合は、PBT フィルムに後述する線状痕を設ける加工を施した後、他のフィルムと積層化するか、上記中間層を介して他のフィルムと積層化することにより製造してもよい。積層化は、各層の間に接着層を設けて押出ラミネーションにより行う。接着層としてはポリエチレン層が好ましい。

- 10 フィルムの進行方向（長手方向）に線状痕を形成した直線的易裂性 PBT フィルムの用途としては、スティック状お菓子用の包装袋がある。長手方向の線状痕を有する直線的易裂性 PBT フィルムを用いることにより、一定の幅を維持しながら先細りのない帯状に開封できるので、お菓子が破損することはない。またおにぎりなどの OPP フィルムを用いた包装は、開封幅に合わせてカットテープ（ティアータープ）が張り合わせてあるが、長手方向に線状痕を形成した直線的易裂性 PBT フィルムは、開口幅を維持して開封できるので、ティアータープを必要
- 15 としない。

フィルムの進行方向に対して斜めの線状痕を形成した直線的易裂性 PBT フィルムの用途としては、粉末状の薬用、弁当用調味料用等の包装袋がある。斜め方向の線状痕を有する直線的易裂性 PBT フィルムを用いることにより、包装袋の角部を容易に斜めに裂くことができる。

- 20 フィルムの幅方向（横方向）に線状痕を形成した直線的易裂性 PBT フィルムの用途としては、粉末状インスタント食品のスティック状包装袋がある。横方向の線状痕を有する直線的易裂性 PBT フィルムを用いることにより、需要が増大しているスティック状包装袋を低コストで製造することができる。

- 25 直線的易裂性 PBT フィルムには、上記[7]に記載の方法に従って、さらに多数の微細な貫通孔及び／又は未貫通孔を均一に形成することができる。これにより直線的易裂性が一層向上するだけでなく、線状痕方向以外にも易裂性を付与することができる。

(II) ポーラスポリブチレンテレフタレートフィルム

ポーラス PBT フィルムは、上記[7]に記載の方法に従って、PBT フィルムに多

数の微細な貫通孔及び／又は未貫通孔を均一に形成したものである。このためポーラス PBT フィルムは、ひねり保持性が高く、ひねり時の裂けも発生せず、ひねり性が良好であり、かつ易裂性を有する。微細孔は $0.5 \sim 100 \mu\text{m}$ の平均開口径を有し、かつ密度は約 $500 \text{ 個}/\text{cm}^2$ 以上であるのが好ましい。微細孔の密度が約 500 個/ cm^2 未満であると、ひねり保持性が不十分である。

ポーラス PBT フィルムは、PBT フィルムの優れた特性である耐熱性、保香性、耐水性等を失うことなく実用面の特性を維持し、良好な引き裂き性とひねり性を具備した包装材として有用である。ただしポーラス PBT フィルムからなる包装材にガスバリア性が要求される場合は、微細孔が貫通していないものを用いる。

以上の通り、図面を参照して本発明を説明したが、本発明はそれらに限定されず本発明の趣旨を変更しない限り種々の変更を加えることができる。

本発明を以下の実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例に限定されるものではない。

実施例 1

図 1 に示す装置を用いて空冷インフレーション成形法により PBT フィルムを作製した。PBT 樹脂（商品名「トレコン 1200S」、東レ（株）製、融点： 220°C 、極限粘度：1.2）を一軸押出機（スクリュー径： 50 mm 、押出量： 50 kg/hr ）に投入し、 210°C で熔融混練し、押出機中で熔融樹脂を調製した。続いて押出機出口から、 210°C の押出樹脂温度及び 11.8 MPa (120 kgf/cm^2) の押出樹脂圧力で熔融樹脂を押し出し、さらにダイヘッド（ダイ径： 150 mm 、ダイリップの間隙： 0.9 mm ）から熔融樹脂のチューブを押し出した。押し出した熔融樹脂のチューブを 3.6 のブローアップ比で膨張させるとともに、(1) 第一の温風吹出装置より温風 (30°C) を噴出させることによりバブルのネック部を 185°C に徐冷し、(2) 第二温風吹出装置から温風 (30°C) を噴出させることによりバブルの膨張部を 160°C に徐冷し、(3) 第三温風吹出装置から温風 (50°C) を噴出させることによりフロストライン領域を 125°C に徐冷し、(4) バブル領域を 100°C に保持しながら 20 m/分 で引き取り、PBT フィルムを作製した。バブル領域を包囲する円筒状ネットはナイロン製のものとし、アクリル樹脂製の円筒型隔壁は、その上部側面に温風排

出口が2箇所設けられており、内側に棒状ヒーターが設けられており、内部上部に開孔率60%の整流板が設けられたものを用いた。

実施例2

- 5 押出樹脂温度を205℃とし、押出樹脂圧力を12.7 MPa (130 kgf/cm²) とした以外は、実施例1と同様にしてPBTフィルムを作製した。

実施例3

- 10 押出樹脂温度を215℃とし、押出樹脂圧力を10.8 MPa (110 kgf/cm²) とした以外は、実施例1と同様にしてPBTフィルムを作製した。

比較例1

- 15 押出樹脂温度を230℃とし、押出樹脂圧力を8.8 MPa (90 kgf/cm²) とした以外は、実施例1と同様にしてPBTフィルムを作製した。

比較例2

整流板を使用しなかった以外は、比較例1と同様にしてPBTフィルムを作製した。

- 20 実施例1～3及び比較例1, 2で得られたPBTフィルムの物性を以下の方法で測定した。結果を表1に示す。

平均膜厚：接触厚さ計により、シートの幅方向における中心部及び両端部の厚さをそれぞれ2点ずつ計6点の膜厚を測定した値を平均した。

- 25 膜厚のバラツキ：PBTフィルムの幅方向における中心部及び両端部の厚さをそれぞれ2点ずつ計6点測定し、そのうちの最大値と最小値との差から求めた。

引張破断強度：幅10 mm短冊状試験片の引張破断強度をASTM D882に準拠して測定。

熱収縮率：PBTフィルムを175℃で10分間暴露したときのMD及びTDの収縮率をそれぞれ測定した。

結晶化度：X線法により測定した。

表 1

製造条件	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1	比較例2
PBT 樹脂 ⁽¹⁾ (グレード)	1200S	1200S	1200S	1200S	1200S
融点(°C)	220	220	220	220	220
極限粘度(IV 値)	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
ダイ径(mm)	150	150	150	150	150
ダイリップの間隙(mm)	0.9	0.9	0.9	0.9	0.9
ブローアップ比	3.6	3.6	3.6	3.6	3.6
押出樹脂温度(°C)	210	205	215	230	235
押出樹脂圧力(MPa)	11.8	12.7	10.8	8.8	8.8
バブルのネック部の温度(°C)	185	185	185	185	185
バブルの膨張部の温度(°C)	160	160	160	160	160
フロストライン領域の温度(°C)	125	125	125	125	125
バブル領域の温度(°C)	100	100	100	100	100
整流板	有り	有り	有り	有り	無し
引き取り速度(m/分)	20	20	20	20	20
バブルの安定性	良好	良好	良好	良好	不良
物性					
平均膜厚(μm)	20	22	18	20	—
膜厚のバラツキ(μm)	±3	±3	±3	±3	—
引張破断強度(gf/25mm)	MD	2700	2400	2100	1900
	TD	2500	2300	2000	1800
熱収縮率(%)	MD	0	0.2	0.2	0.5
	TD	0.1	0.2	0.1	0.2
結晶化度	39.6	39.6	36.7	<30	—

注：(1) 東レ(株) 商品名「トレコン」

表 1 に示すように、本発明の方法により製造した実施例 1 ～ 3 の PBT フィルム

- は、結晶化度が高く、膜厚の均一性及び引張破断強度に優れ、かつ熱収縮率が低いことが分かる。実施例 1 ～ 3 では、PBT フィルムを作製中、バブルは横揺れせず、終始安定していた。これに対して比較例 1 は、押出樹脂温度を PBT 樹脂の融点以上とするので、結晶化度が低く、引張破断強度が劣っていた。比較例 2 は、
- 5 整流板を用いないので、フィルム作製中にバブルが横揺れを起こし、不安定であった。

請求の範囲

1. 環状ダイから押し出した溶融ポリブチレンテレフタレート樹脂のチューブを空気の注入により膨張させる空冷インフレーション法によりポリブチレンテレフタレートフィルムを製造する方法において、押出樹脂温度を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の融点 -15°C ～前記融点 -5°C とし、かつ押出樹脂圧力を $8.3\sim 13.7\text{ MPa}$ とすることを特徴とする方法。
- 5 2. 請求項1に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記ポリブチレンテレフタレート樹脂の極限粘度は $0.8\sim 1.5$ であることを特徴とする方法。
- 10 3. 請求項1又は2に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記環状ダイのリップの間隙は $0.8\sim 1.2\text{ mm}$ であり、ダイ径は $120\sim 250\text{ mm}$ であり、ブローアップ比は $2.0\sim 4.0$ であることを特徴とする方法。
4. 請求項1～3のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、(1) 前記環状ダイの付近に設けられた第一温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのネック部を前記融点 -40°C ～前記融点 -25°C に徐冷し、(2) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられた第二温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルの膨張部を前記融点 -70°C ～前記融点 -40°C に徐冷し、(3) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられた第三温風吹出装置から温風を噴出させることにより、前記バブルのフロストライン領域を前記融点 -130°C ～前記融点 -90°C に徐冷し、(4) 前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に間隙をもって設けた隔壁により、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を前記バブル領域の外面に沿って吹き上げることを特徴とする方法。
- 15 20 5. 請求項4に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記隔壁に複数の温風排出口を設けるとともに、前記隔壁の内側に整流板を設けることにより、前記第一～第三温風吹出装置から噴出した温風を整流することを特徴とする方法。
- 25 6. 請求項4又は5に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法

において、前記第二温風吹出装置から噴出した温風により、前記バブルの膨張部を非晶質状態に保持しながら徐冷することを特徴とする方法。

7. 請求項4～6のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記隔壁は加熱手段を有し、もって前記バブル領域を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度 T_g 乃至 $T_g+65^{\circ}\text{C}$ の温度に保持することを特徴とする方法。
- 5 8. 請求項4～7のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記バブル領域を円筒状ネットで包囲することにより、前記バブルの横揺れを防止することを特徴とする方法。
- 10 9. 請求項4～8のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記第一及び第二温風吹出装置から噴出する温風の温度は $25\sim 50^{\circ}\text{C}$ であり、前記第三温風吹出装置から噴出する温風の温度は前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度 T_g 乃至 $T_g+65^{\circ}\text{C}$ の温度であることを特徴とする方法。
- 15 10. 請求項1～9のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、得られた空冷インフレーションフィルムをさらに一軸又は二軸に冷延伸することを特徴とする方法。
11. 請求項10に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、前記冷延伸を前記ポリブチレンテレフタレート樹脂のガラス転移温度 T_g 乃至 $T_g+60^{\circ}\text{C}$ の温度で行うことを特徴とする方法。
- 20 12. 請求項10又は11に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成及び前記一軸又は二軸の冷延伸を連続的に行うことを特徴とする方法。
13. 請求項10～12のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、得られたチューブ状フィルムを二分割した後で一軸又は二軸に冷延伸することを特徴とする方法。
- 25 14. 請求項10～13のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造方法において、空冷インフレーション法によるチューブ状フィルムの形成、前記チューブ状フィルムの二分割、及び前記一軸又は二軸の冷延伸を連続的

に行うことを特徴とする方法。

15. 請求項 1～9 のいずれかに記載の製造方法により得られたポリブチレンテレフタレートフィルムであって、結晶化度が 35～40%であり、長手方向及び幅方向の熱収縮率が 0.4%以下であることを特徴とするポリブチレンテレフタレート
5 フィルム。

16. (a) 熔融ポリブチレンテレフタレート樹脂をチューブ状に押し出す環状ダイと、(b) 得られたポリブチレンテレフタレートチューブ内に空気を注入してバブルを形成する手段と、(c) 前記環状ダイの付近に設けられ、前記バブルのネック部を徐冷する第一温風吹出装置と、(d) 前記第一温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルの膨張部を徐冷する第二温風吹出装置と、(e) 前記第二温風吹出装置の上方に設けられ、前記バブルのフロストライン領域を徐冷する第三温風吹出装置と、(f) 前記第三温風吹出装置の上方で、かつ前記フロストラインより上方のバブル領域の周囲に設けられ、前記バブル領域を外部雰囲気から遮断するとともに、前記第一～第三温風吹出装置より噴出した温風を前記バブル領域の外面に
10 沿って吹き上げるための隔壁とを具備し、前記隔壁は複数の温風排出口を有することを特徴とする装置。

17. 請求項 16 に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記隔壁の内側に整流板が設けられていることを特徴とする装置。

18. 請求項 16 又は 17 に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記隔壁の内側に加熱手段が設けられていることを特徴とする装置。
20

19. 請求項 16～18 のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記バブルの横揺れを防止するために、前記隔壁の内側に前記バブル領域を包囲する円筒状ネットを具備することを特徴とする装置。

20. 請求項 16～19 のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記第二温風吹出装置から噴出した温風により前記バブルの膨張部を非晶質状態で徐冷することを特徴とする装置。
25

21. 請求項 16～20 のいずれかに記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、得られた空冷インフレーションフィルムを冷延伸する手段をさらに有することを特徴とする装置。

22. 請求項 21 に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記環状ダイ、前記空気注入手段、前記第一温風吹出装置、前記第二温風吹出装置、前記第三温風吹出装置及び前記隔壁を有する空冷インフレーション手段と、前記冷延伸手段とが前記フィルムの流れに沿って連続的に配置されていることを特徴とする装置。

23. 請求項 22 に記載のポリブチレンテレフタレートフィルムの製造装置において、前記空冷インフレーション手段により形成されたチューブ状フィルムを引き取るニップロールを具備するとともに、前記空冷インフレーション手段と前記冷延伸手段との間に、(1) 前記ニップロールにより引き取られたシート状の前記チューブ状フィルムの耳端位置を一定に制御するエッジ・ポジション制御装置と、(2) 前記耳端位置が一定に制御された前記チューブ状フィルムを二分割する切断手段とをさらに有することを特徴とする装置。

24. 請求項 1～9 のいずれかに記載の製造方法により得られたポリブチレンテレフタレートフィルムと、紙シート、他の樹脂フィルム及び金属箔からなる群から選ばれた少なくとも一種を含む他のフィルム又はフィルム積層体とを有し、所定の温度域で第一の形状を記憶させたことを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

25. 請求項 24 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記所定の温度域と異なる温度域で第二の形状に変形加工されたことを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

26. 請求項 25 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記第一の形状を記憶させた温度以上に曝されることにより、前記第二の形状から前記第一の形状に実質的に戻ることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

27. 請求項 26 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記第一の形状に戻る温度は、前記ポリブチレンテレフタレートのガラス転移温度以下であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

28. 請求項 27 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムに

において、前記第一の形状に戻る温度は 15～25℃であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

29. 請求項 26 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記第一の形状に戻る温度は、前記ポリブチレンテレフタレートのガラス転移温度超～融点未満であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

30. 請求項 29 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記第一の形状に戻る温度は 75～100℃であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

31. 請求項 25～30 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記第一の形状はカール形状であり、前記第二の形状はほぼ平坦な形状又は逆カール形状であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

32. 請求項 24～31 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの少なくとも一面に多数の実質的に平行な線状痕が全面的に形成されており、もって任意の位置から前記線状痕に沿って実質的に直線的に裂くことができることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

33. 請求項 32 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記線状痕の深さは前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの厚さの 1～40%であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

34. 請求項 32 又は 33 に記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記線状痕の深さは 0.1～10 μm であり、前記線状痕の幅は 0.1～10 μm であり、かつ前記線状痕同士の間隔は 10～200 μm であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

35. 請求項 32～34 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの少なくとも一面にセラミック又は金属が蒸着されていることを特徴とする形状記憶ポリブチ

レンテレフタレート積層フィルム。

36. 請求項 24～35 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、順に、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムと、前記紙シートと、シーラントフィルムとを有する層構成であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

37. 請求項 24～35 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、順に、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムと、前記紙シートと、剛性フィルムと、シーラントフィルムとを有する層構成であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

38. 請求項 24～35 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、順に、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムと、剛性フィルムと、シーラントフィルムとを有する層構成であることを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

39. 請求項 26～38 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムにおいて、前記ポリブチレンテレフタレートフィルムの前記紙シート側の面か、前記剛性フィルムの前記シーラントフィルム側の面に遮光性インク層を有することを特徴とする形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルム。

40. 請求項 24～39 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムからなることを特徴とする包装材。

41. 請求項 24～39 のいずれかに記載の形状記憶ポリブチレンテレフタレート積層フィルムからなることを特徴とする容器用蓋体。

図1

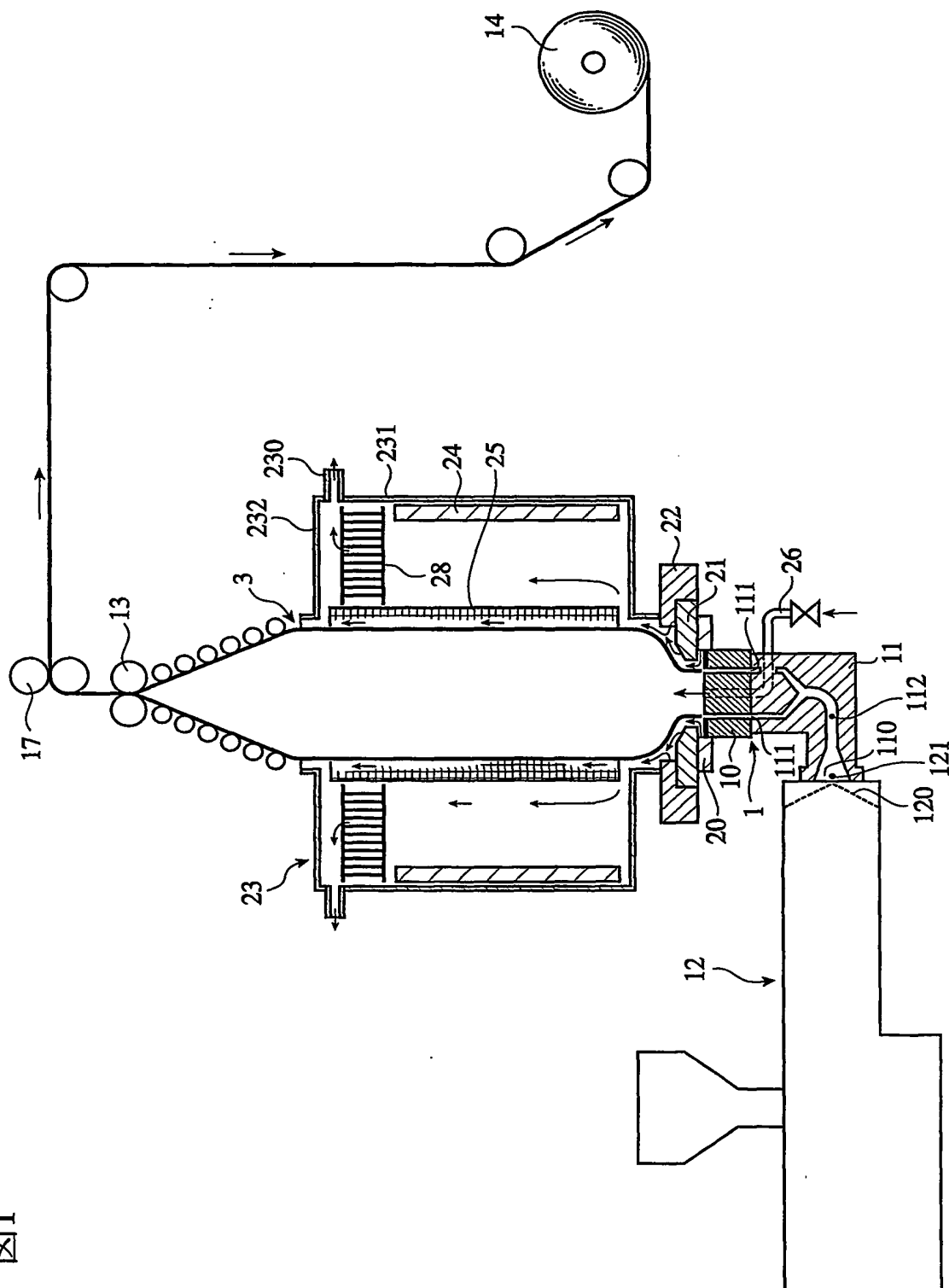


図2

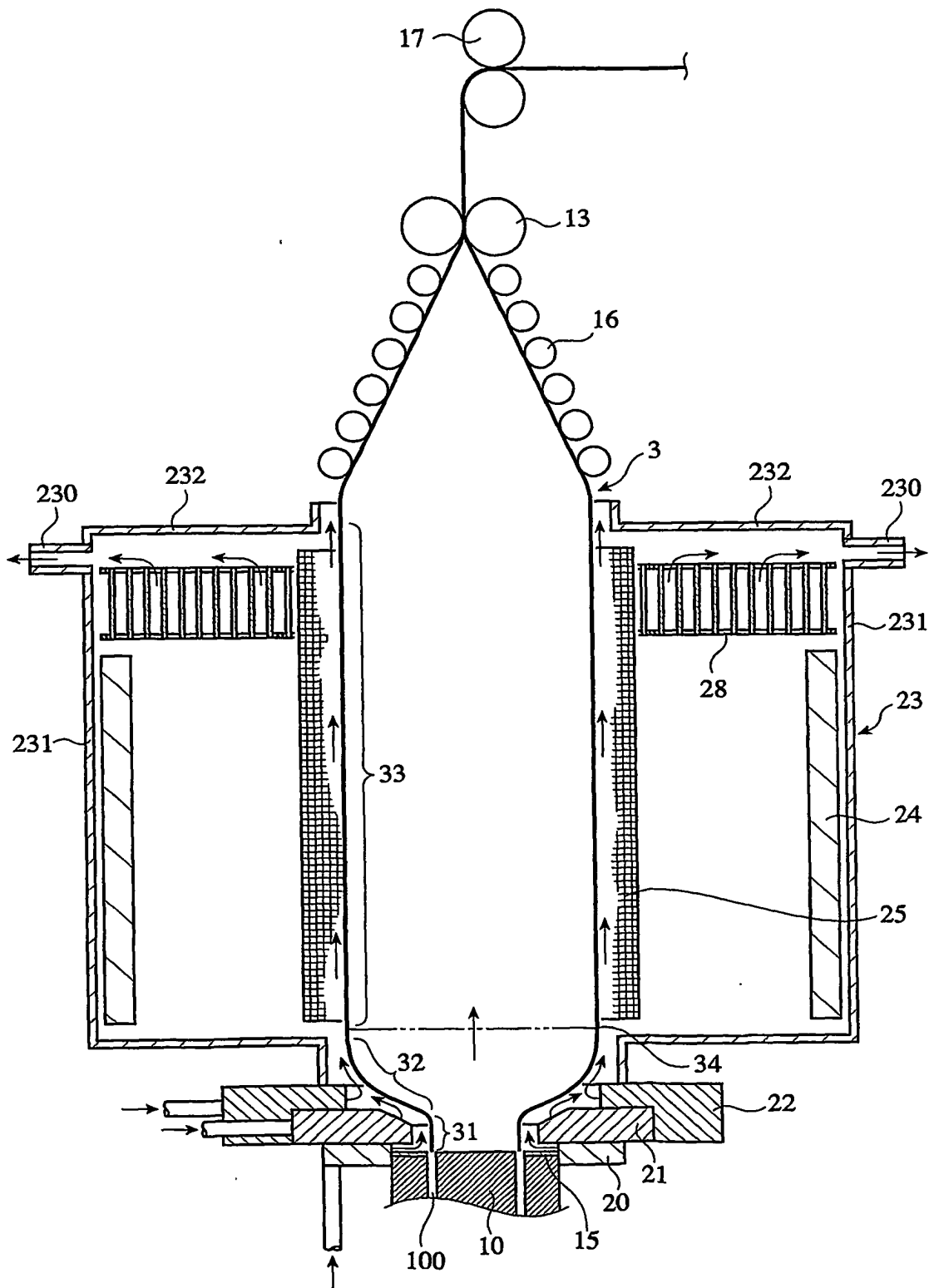


図3(a)

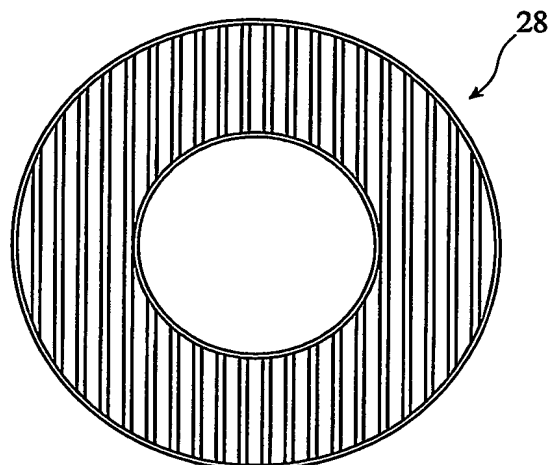


図3(b)

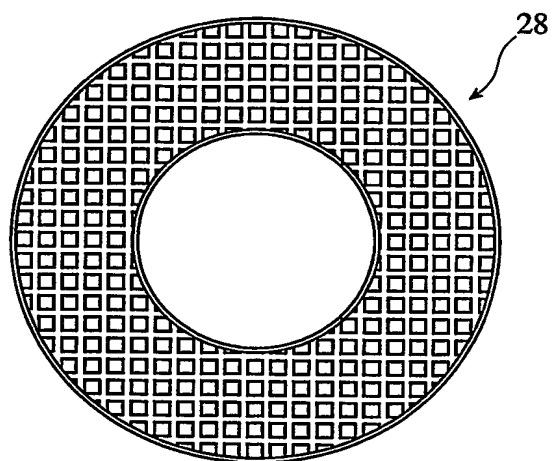


図3(c)

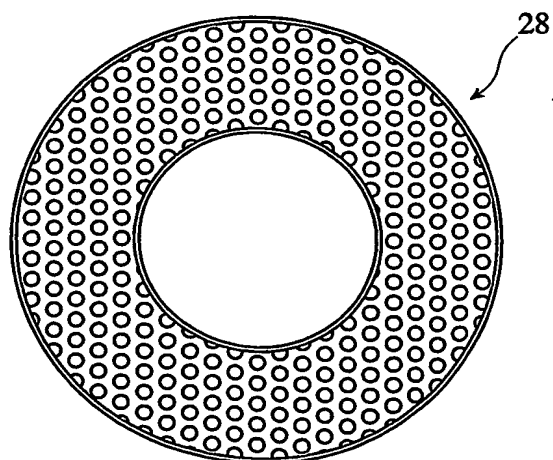


図4(a)

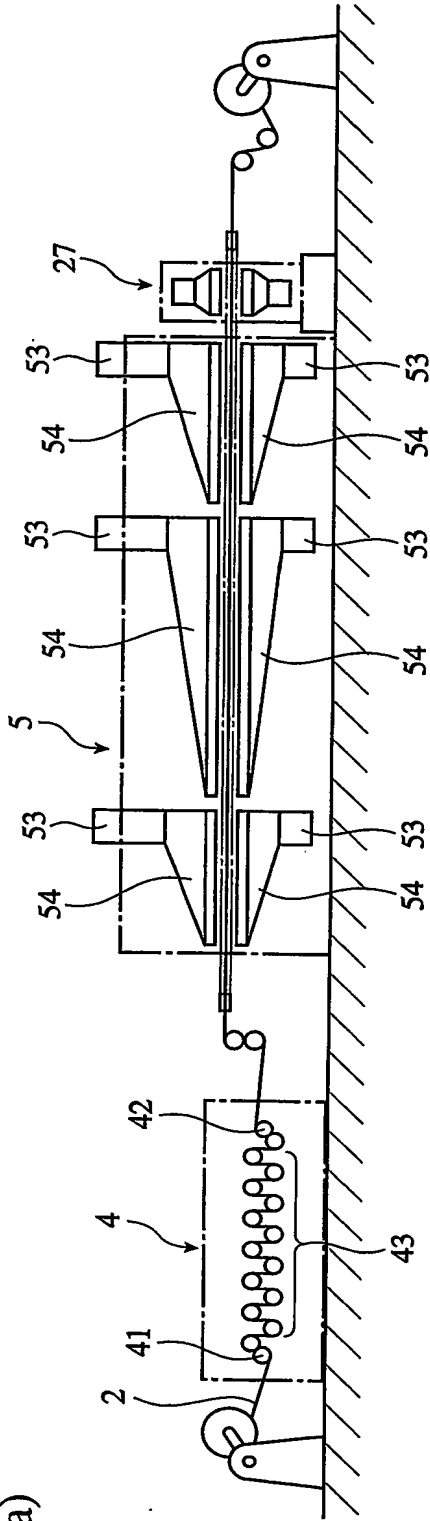


図4(b)

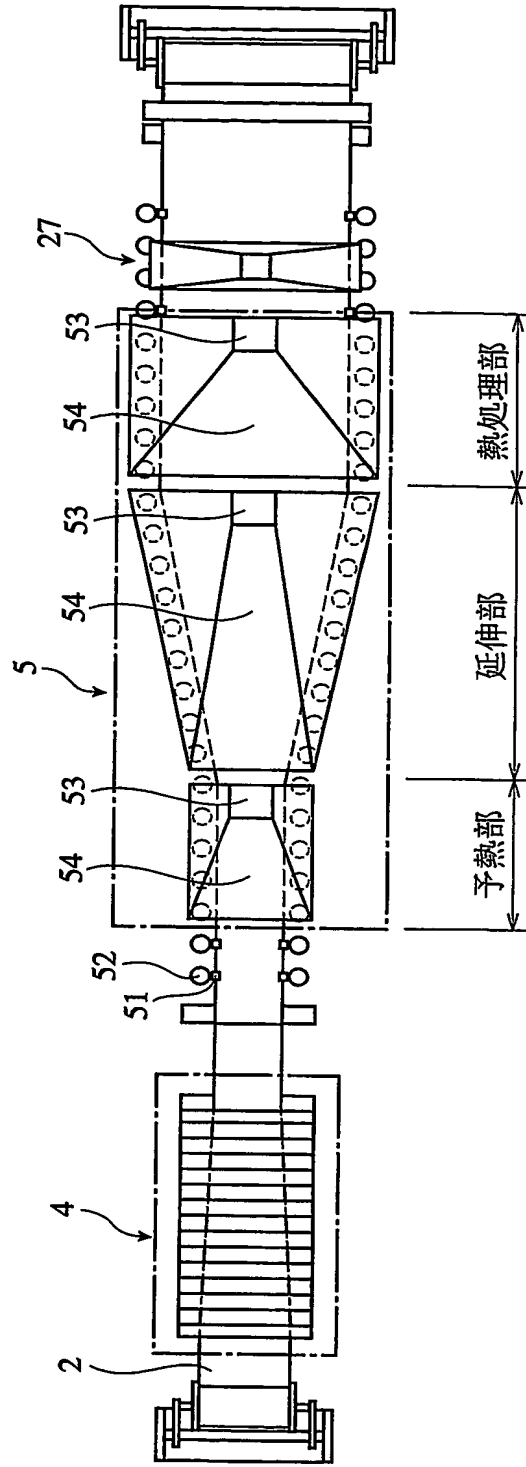


図5(a)

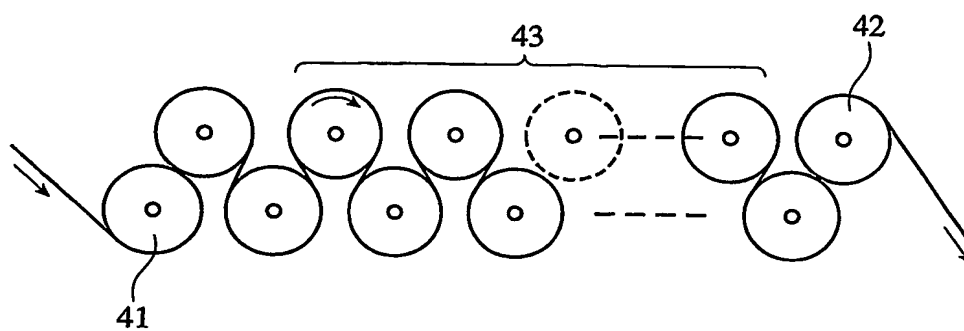


図5(b)

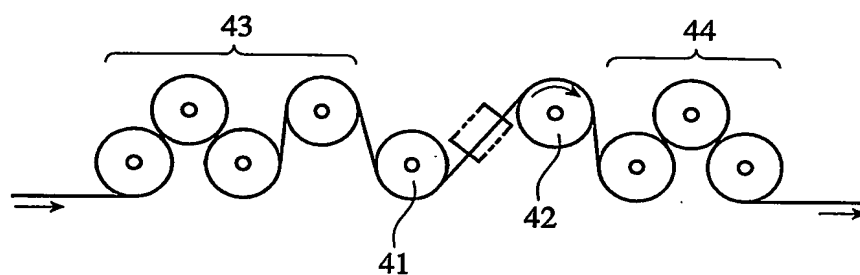
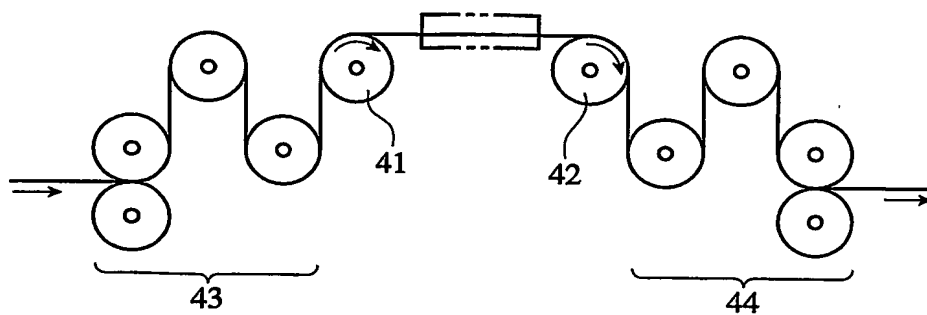


図5(c)



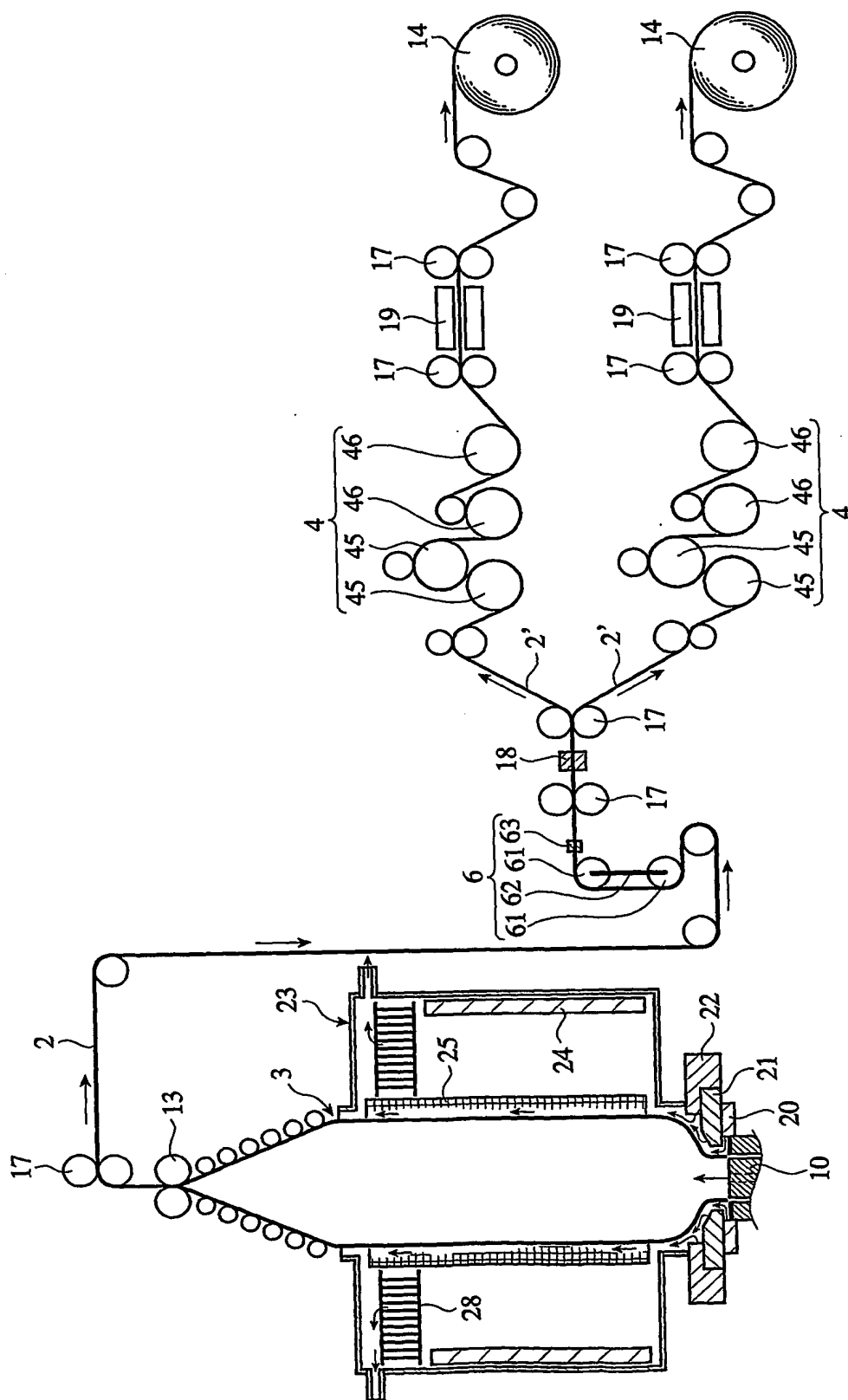


図7

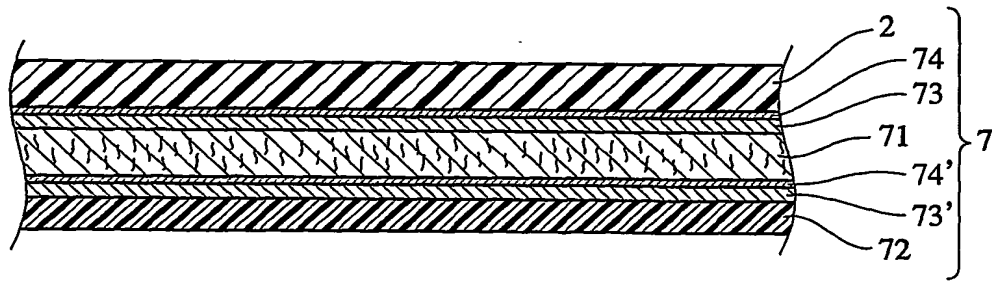


図8

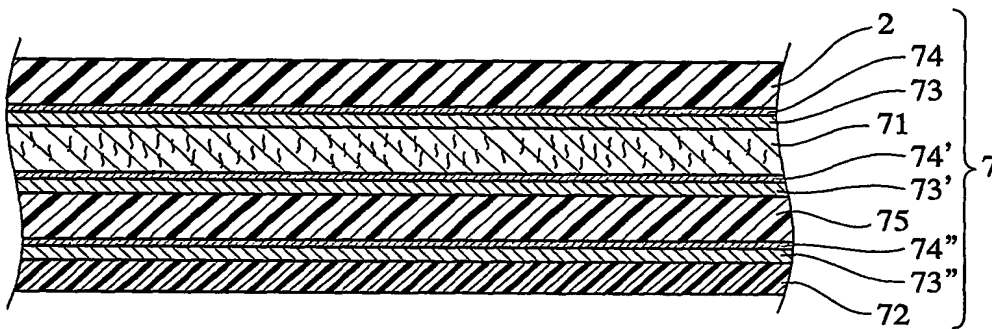


図9

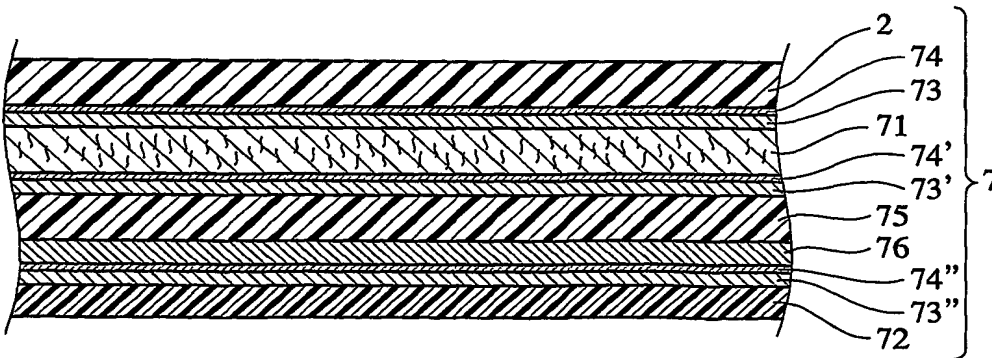


図10

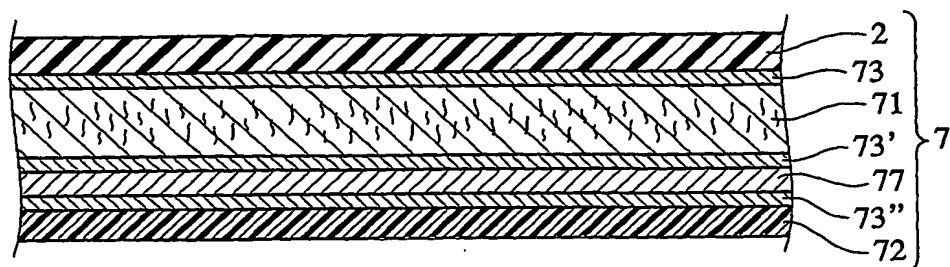


図11

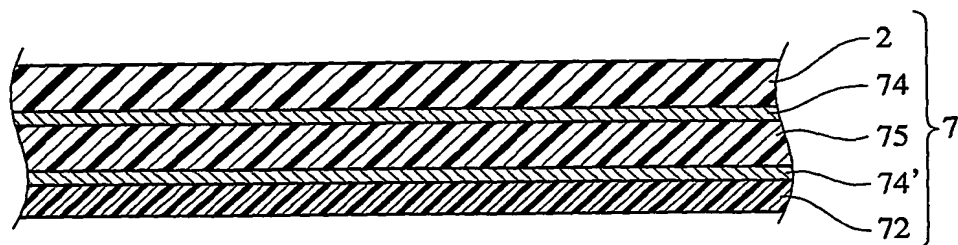


図12

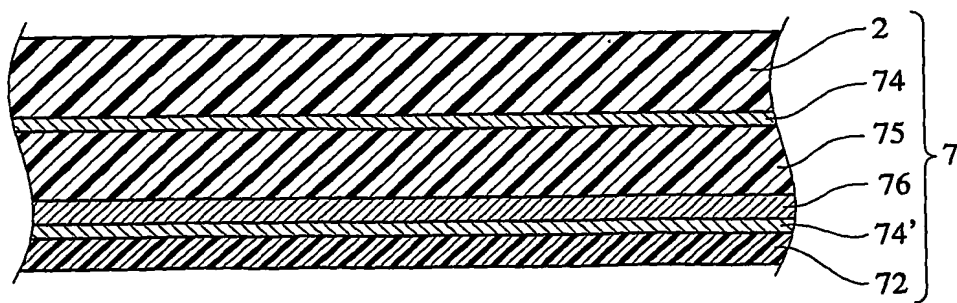


図13

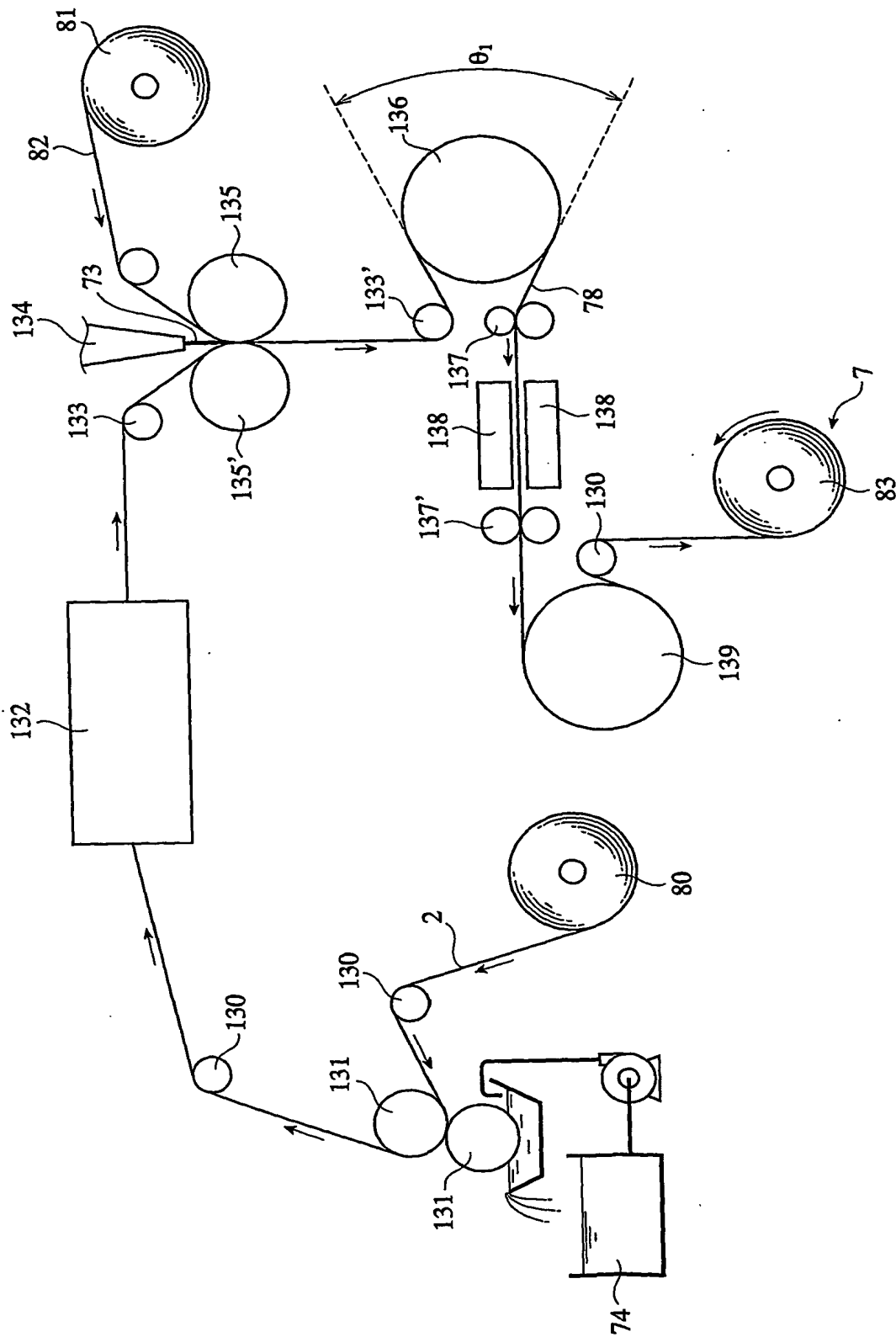


図15

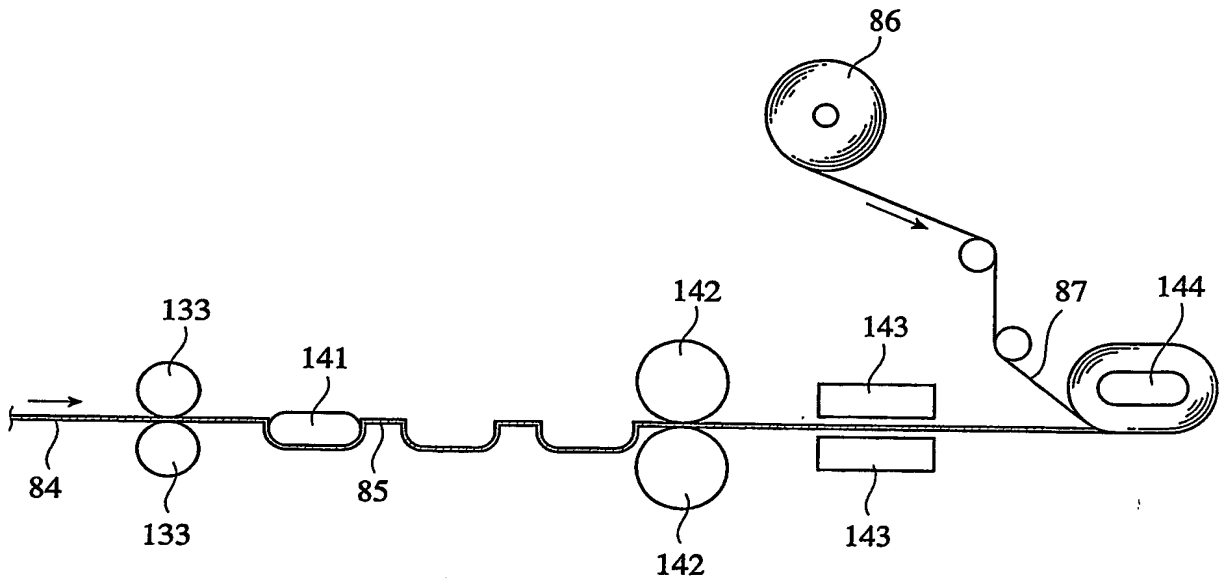


図16

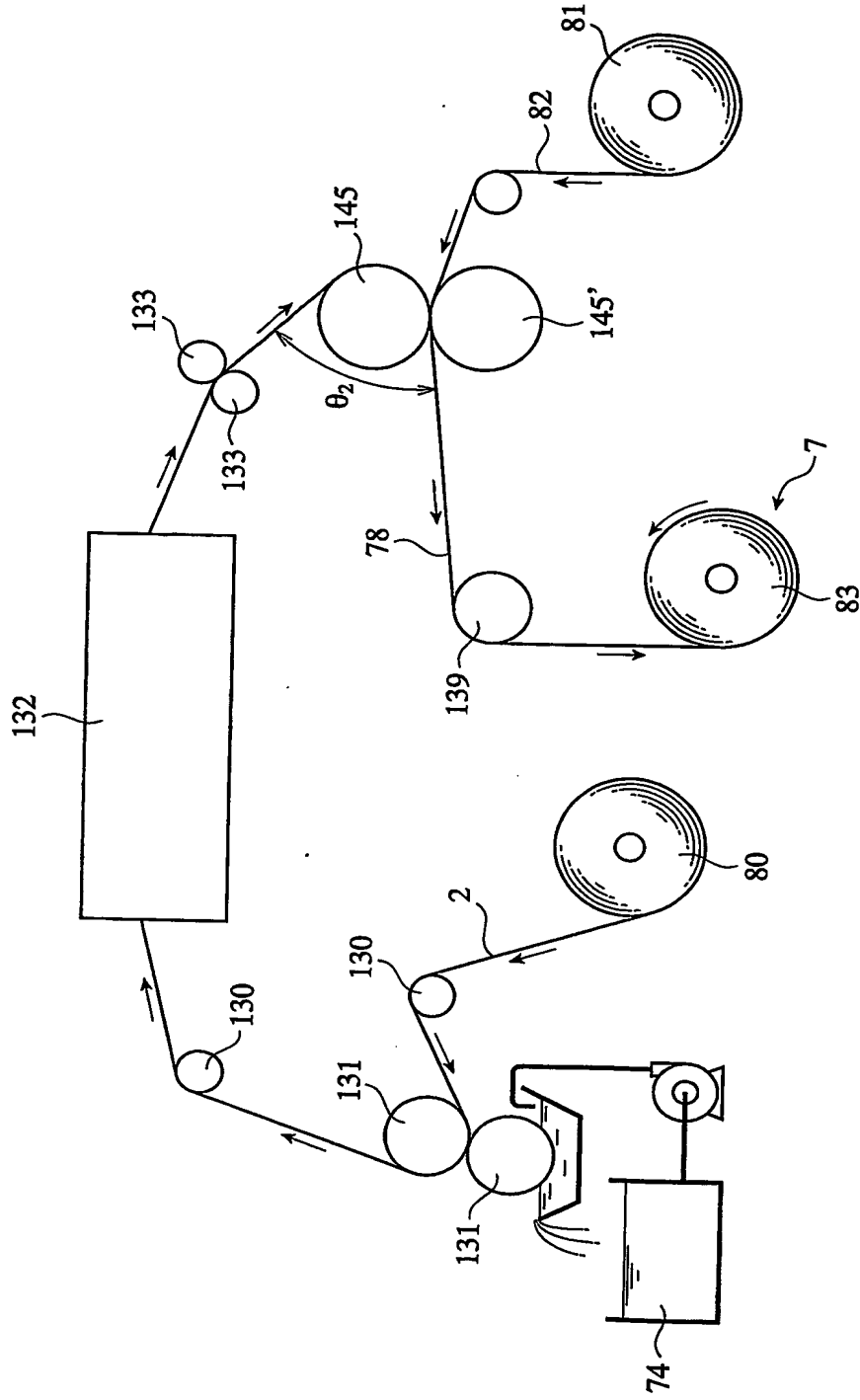


図18

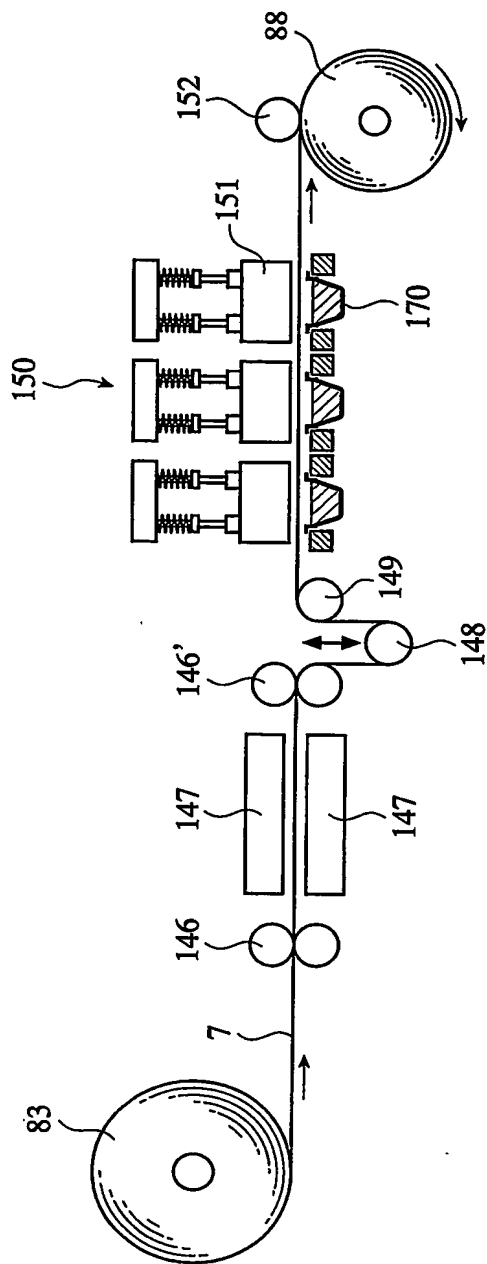


図19

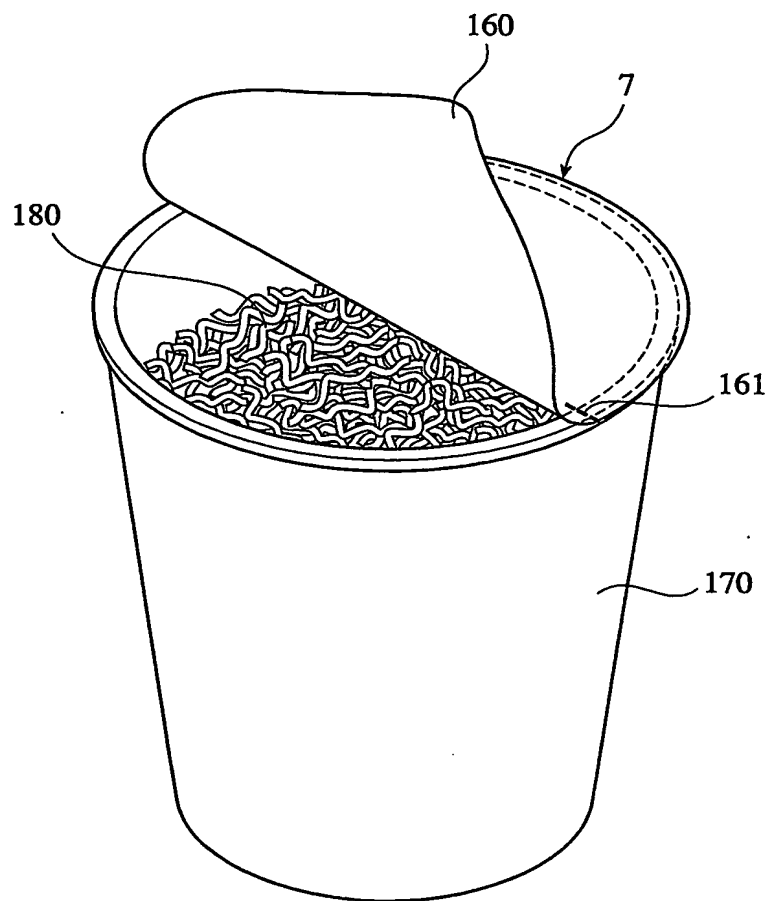


図21

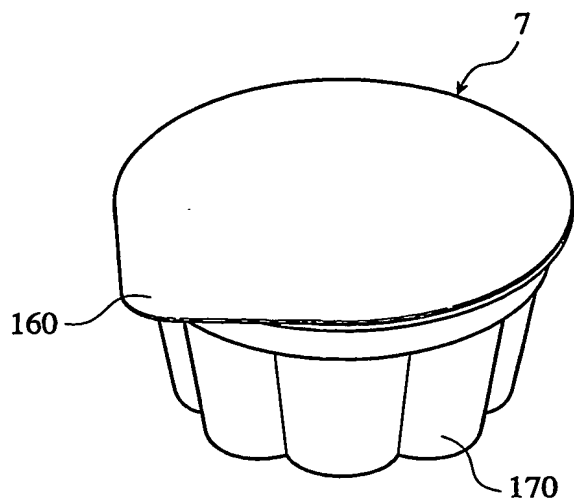


図22

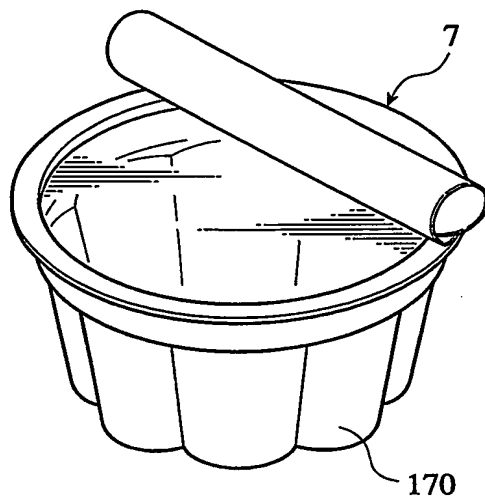


図23

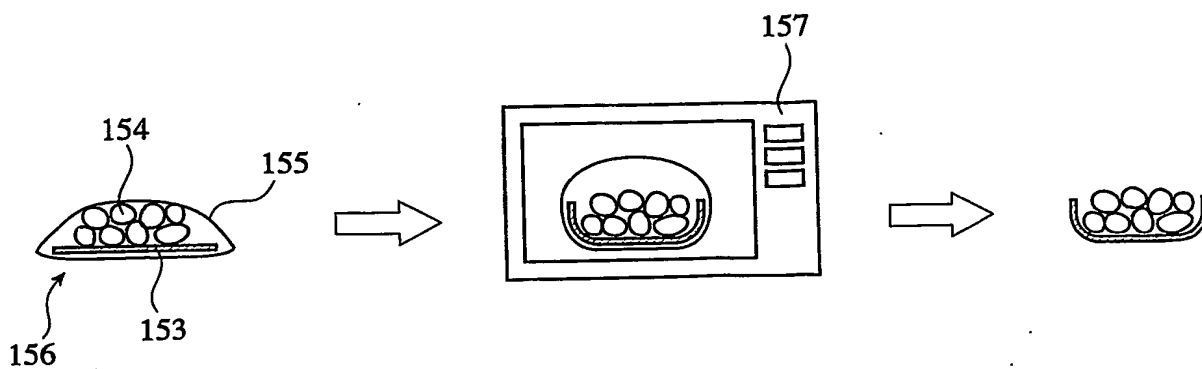


図24

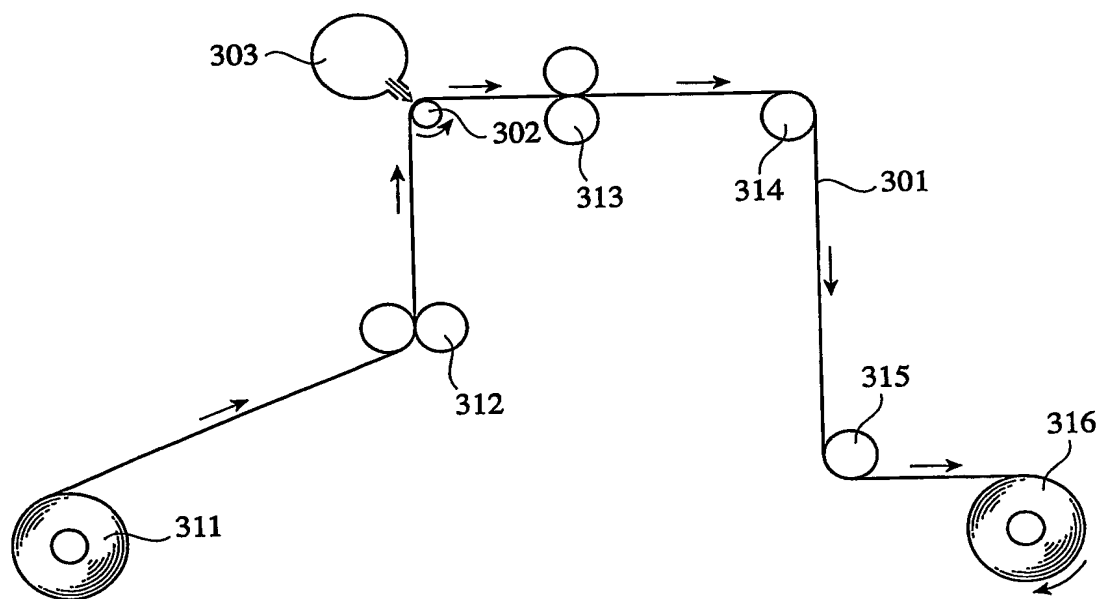


図25

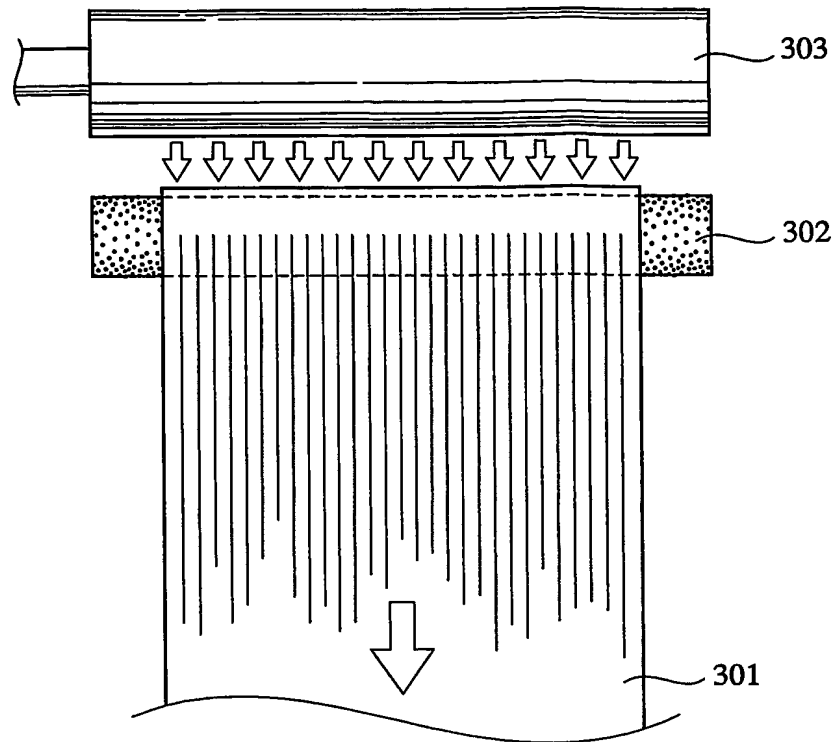


図26

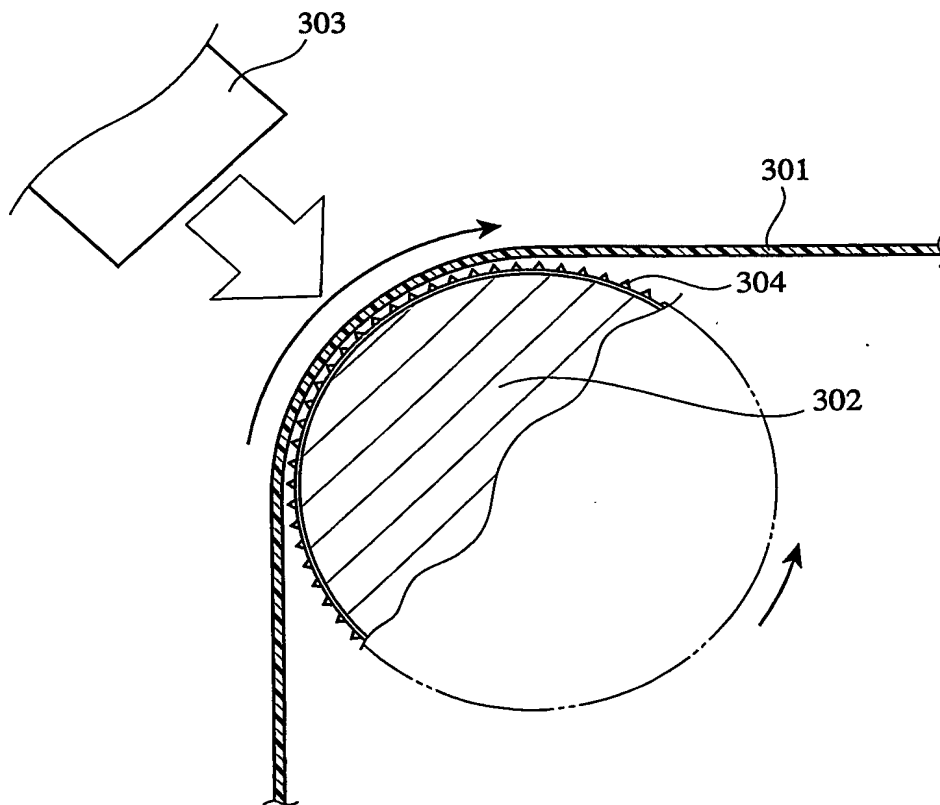


図27(a)

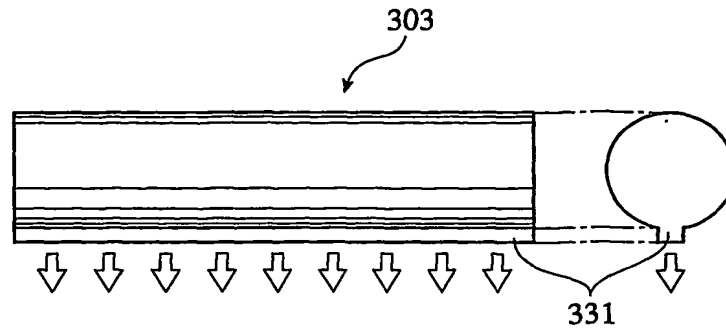


図27(b)

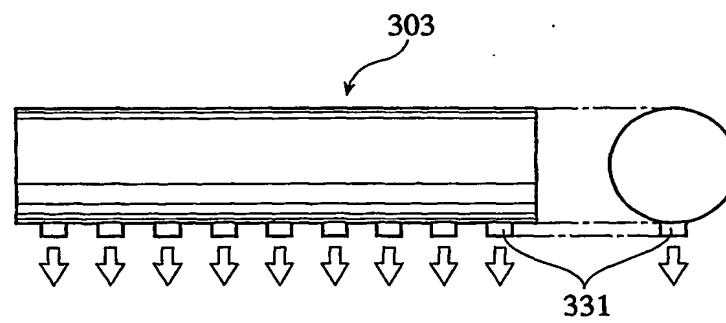


図27(c)

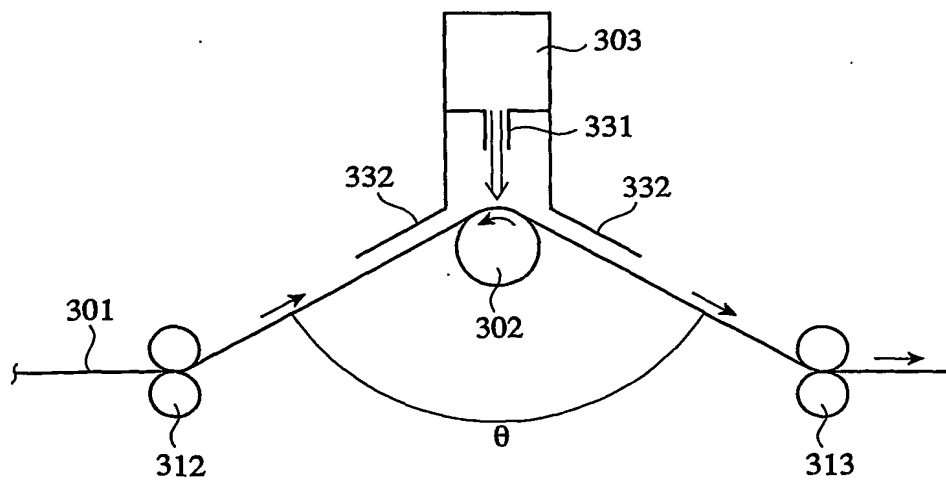


図28

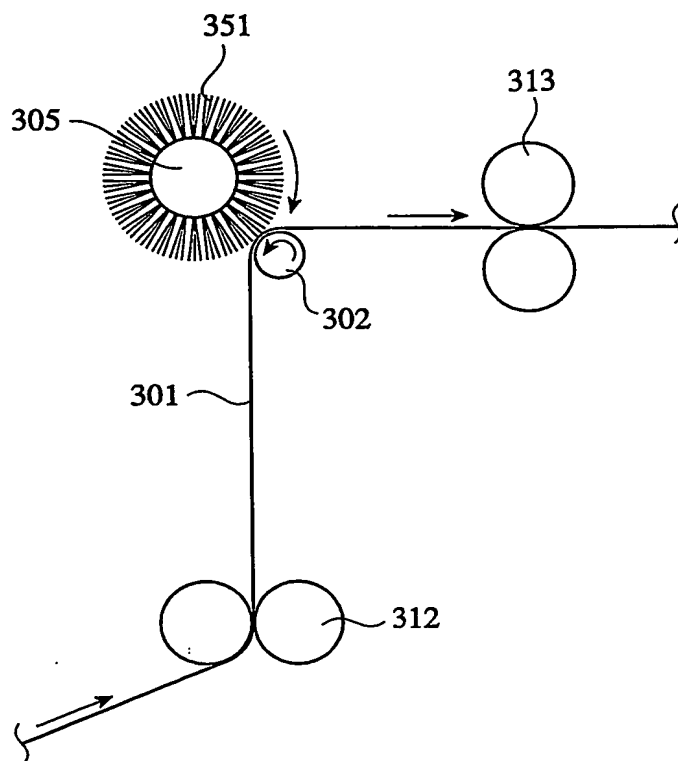


図29

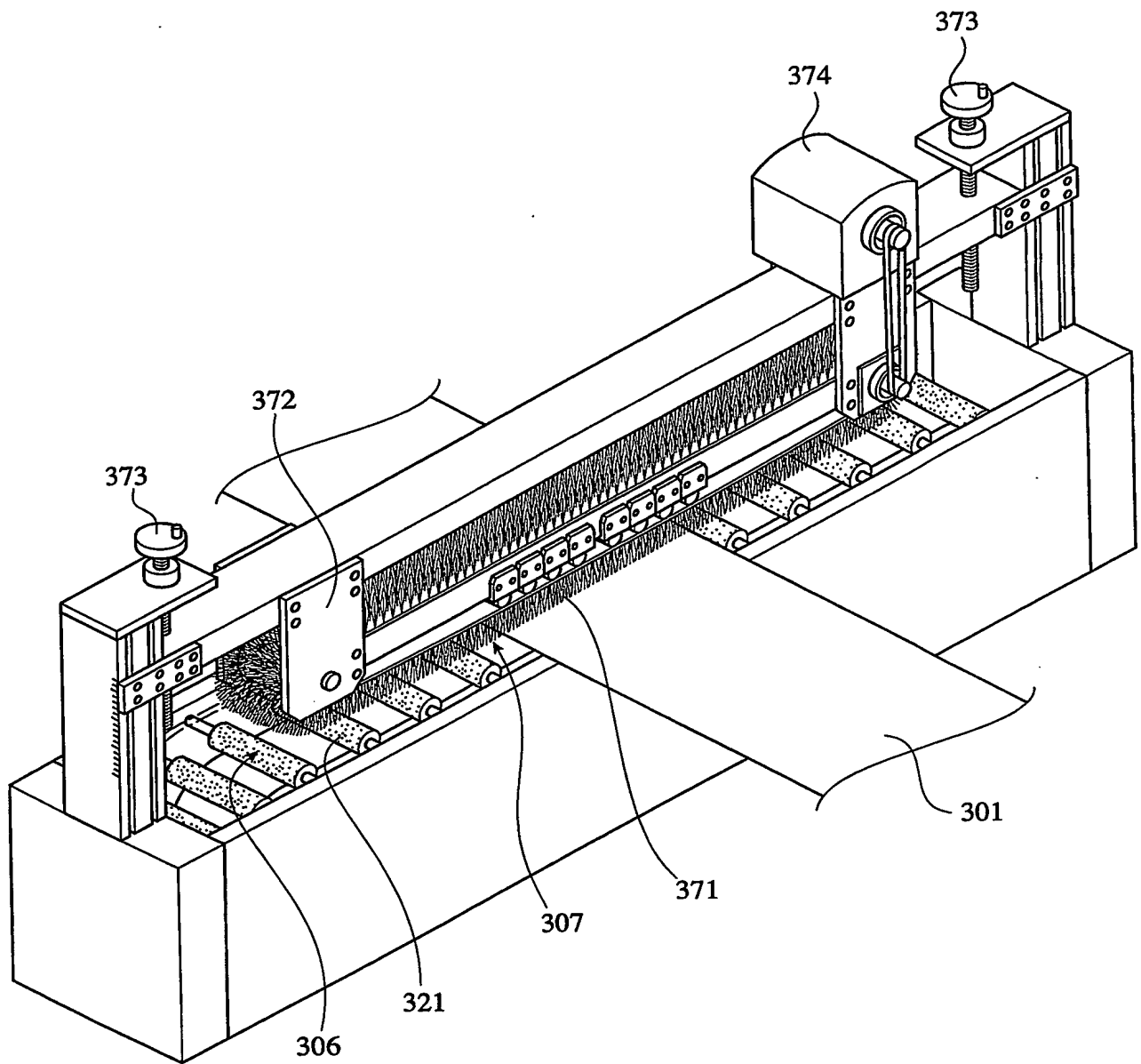


図30(a)

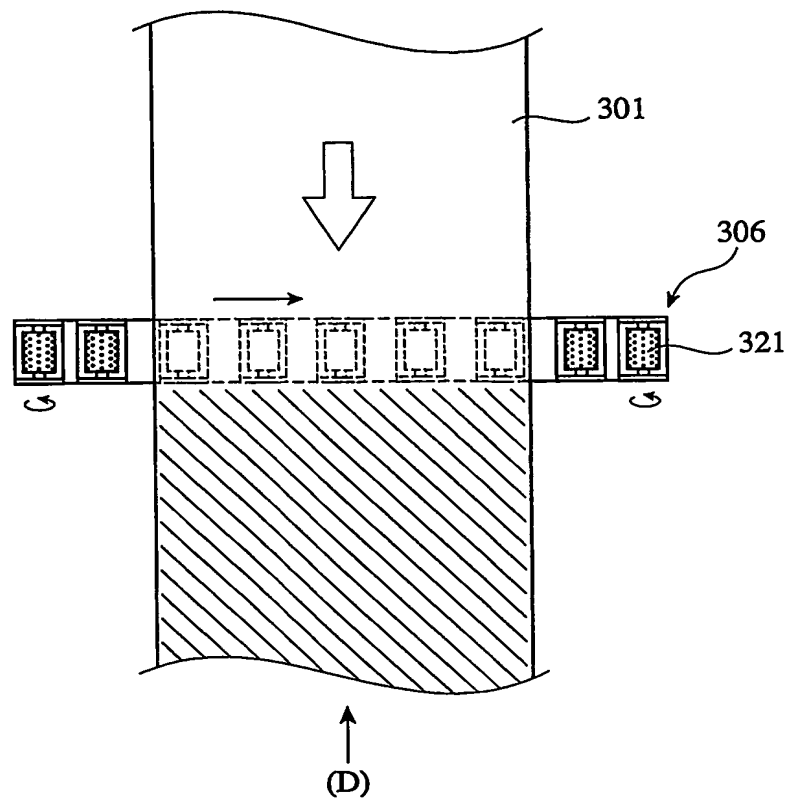


図30(b)

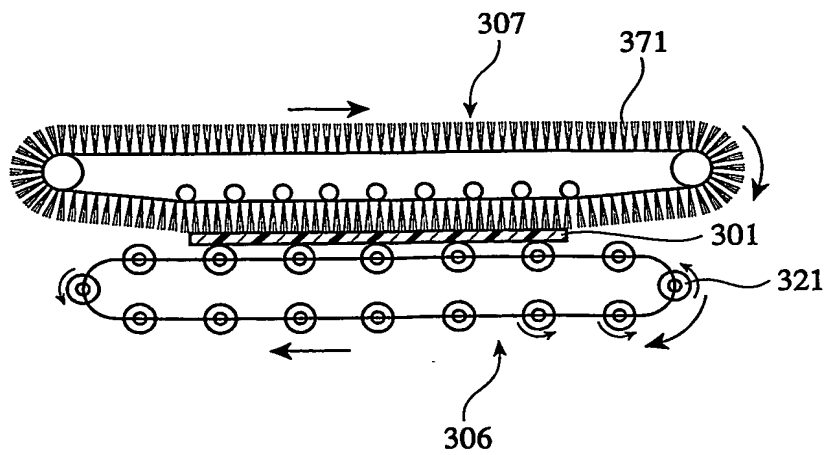


図31

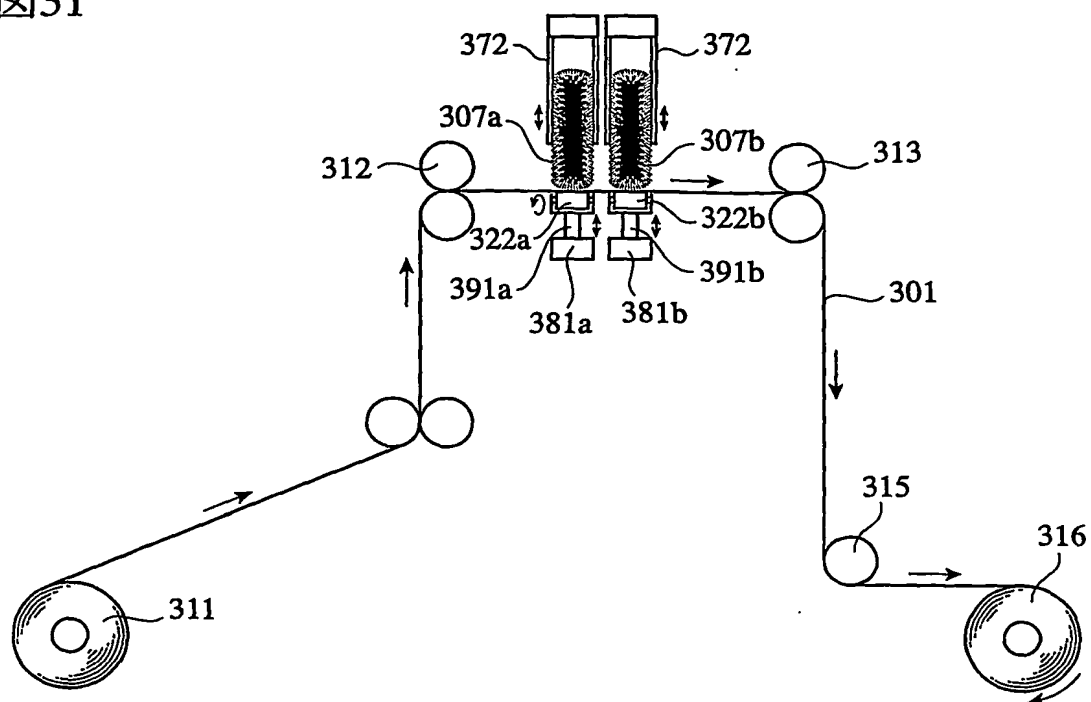


図32

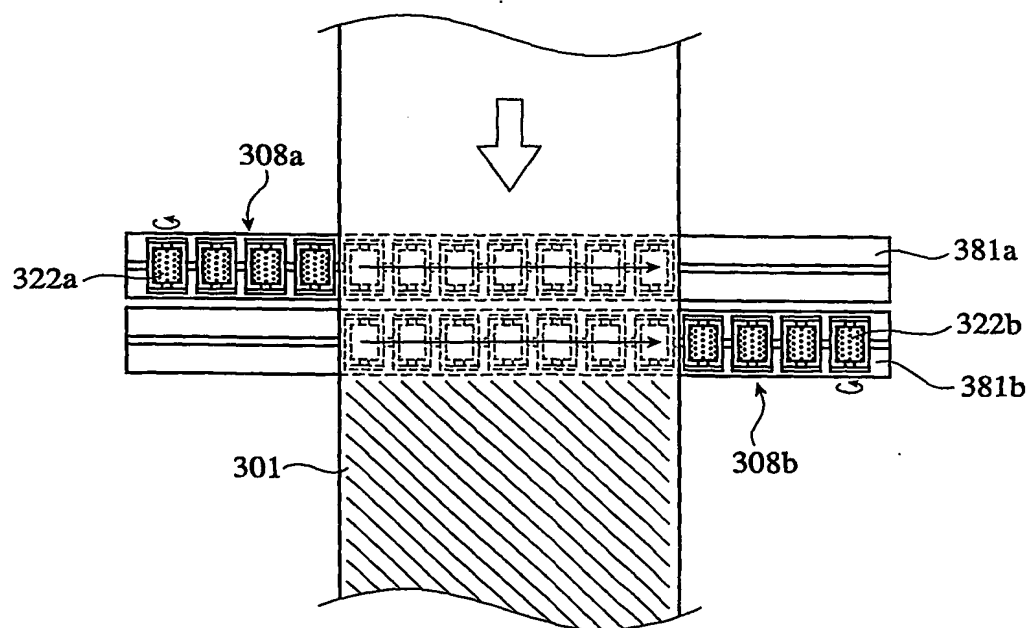


図33(a)

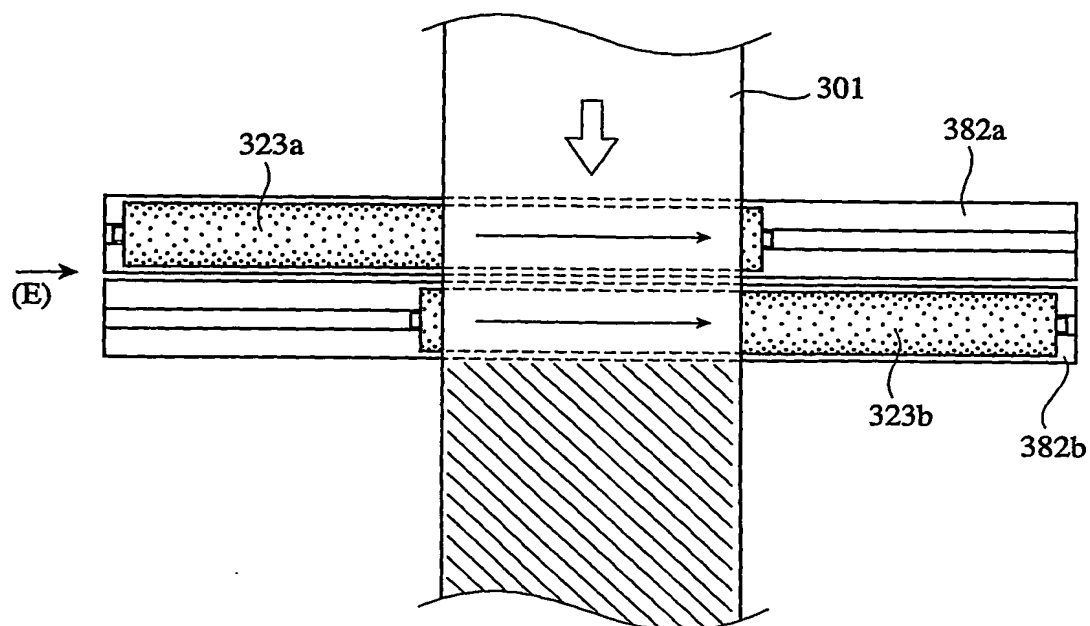


図33(b)

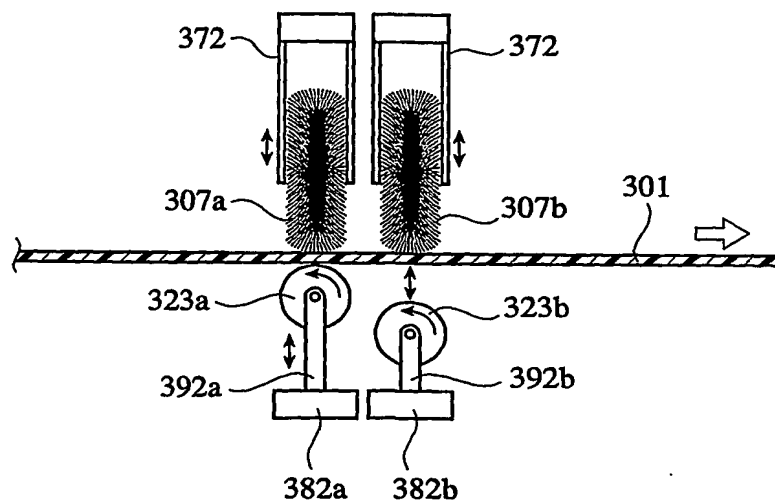


図34

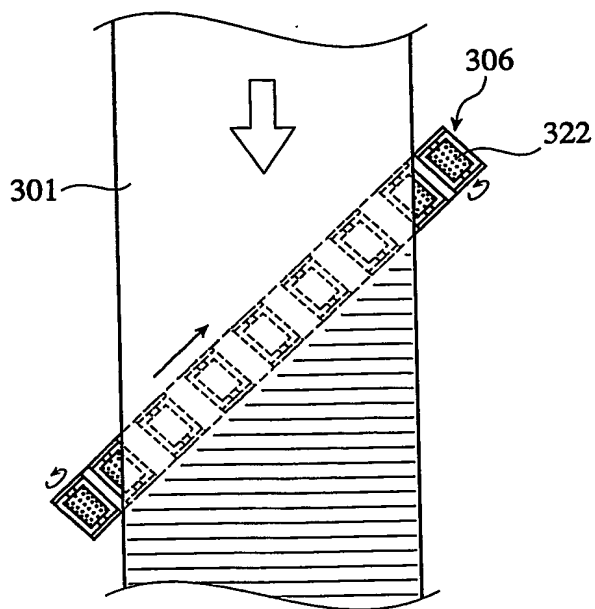


図35

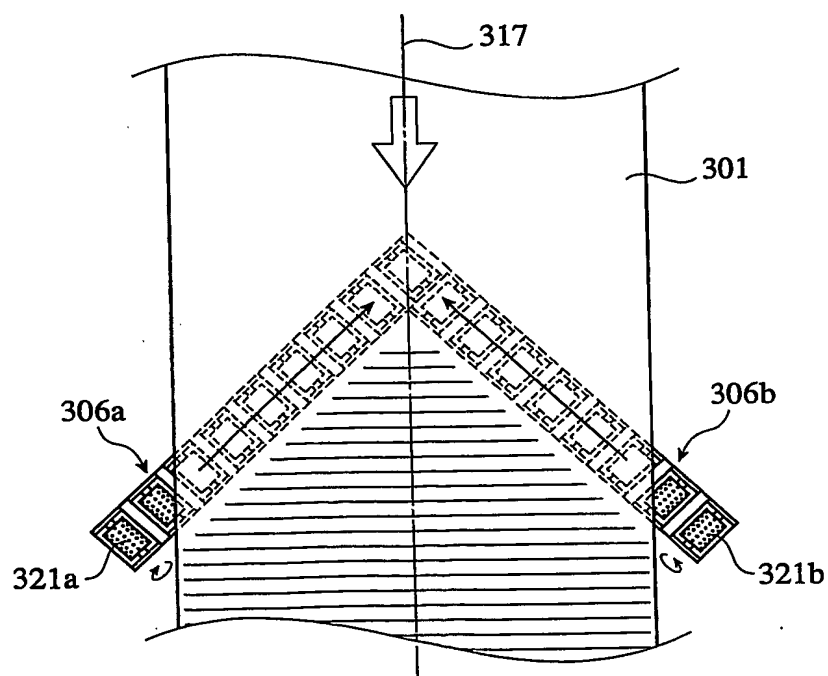


図36

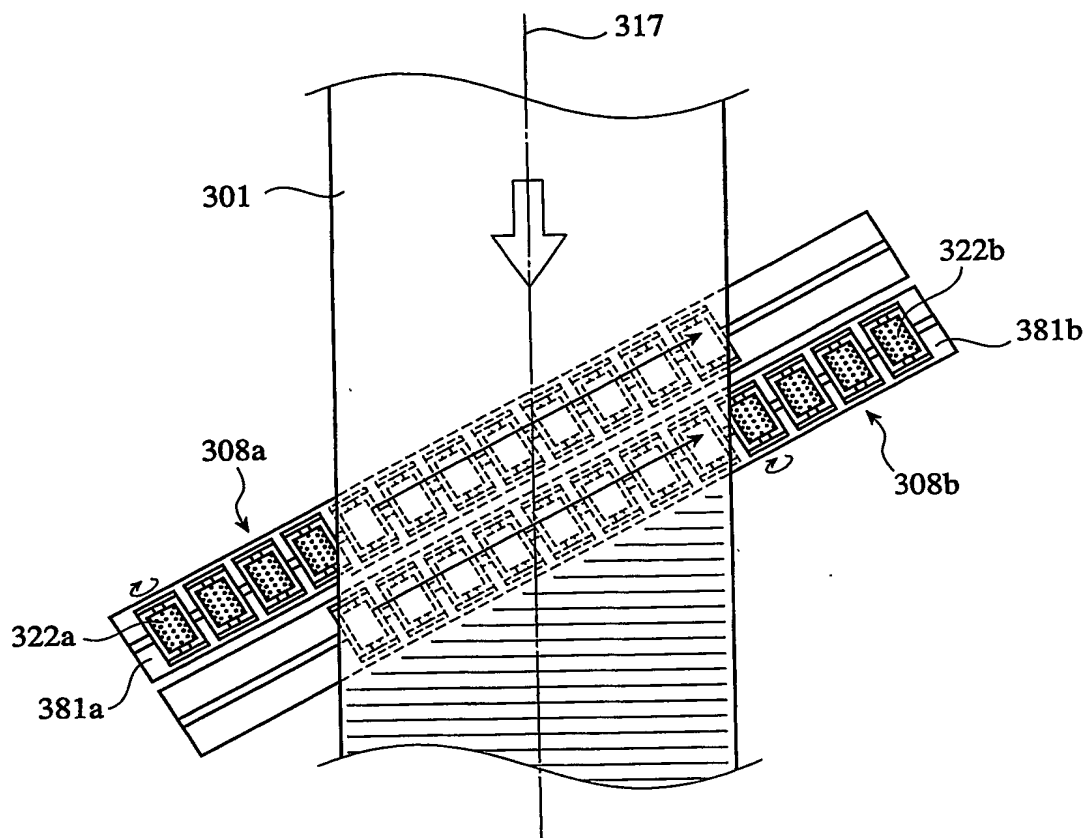


図37(a)

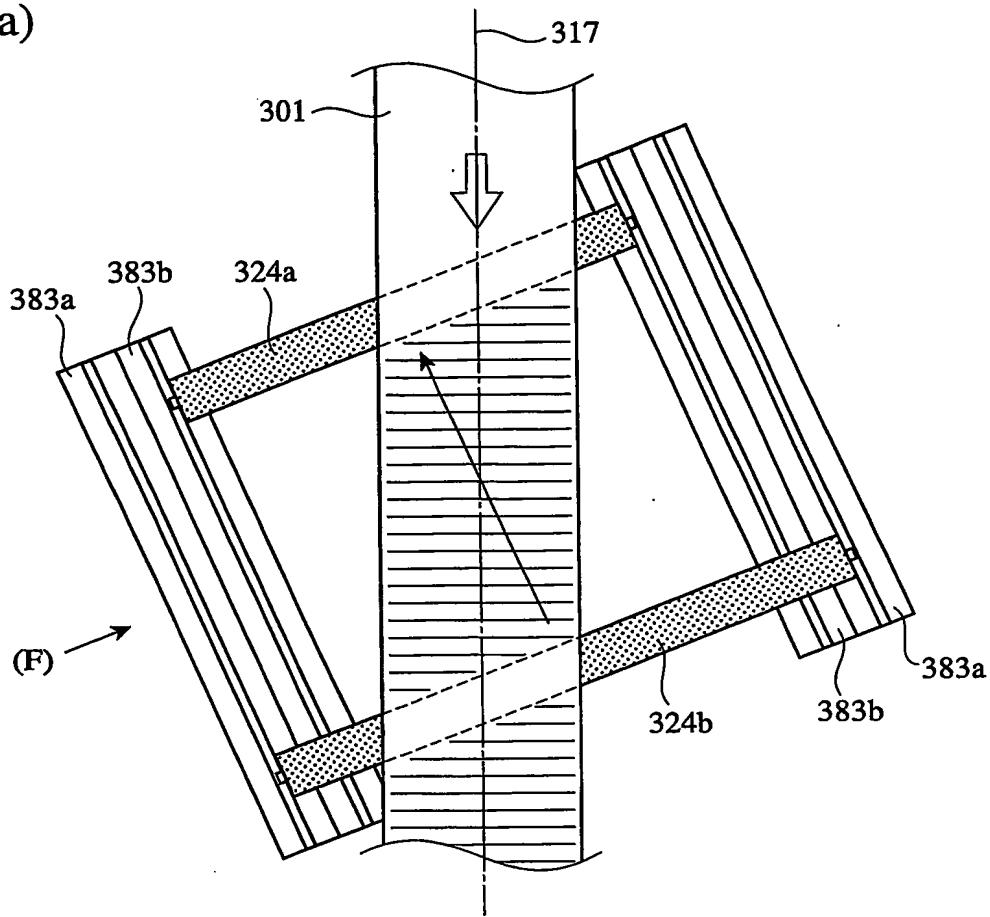
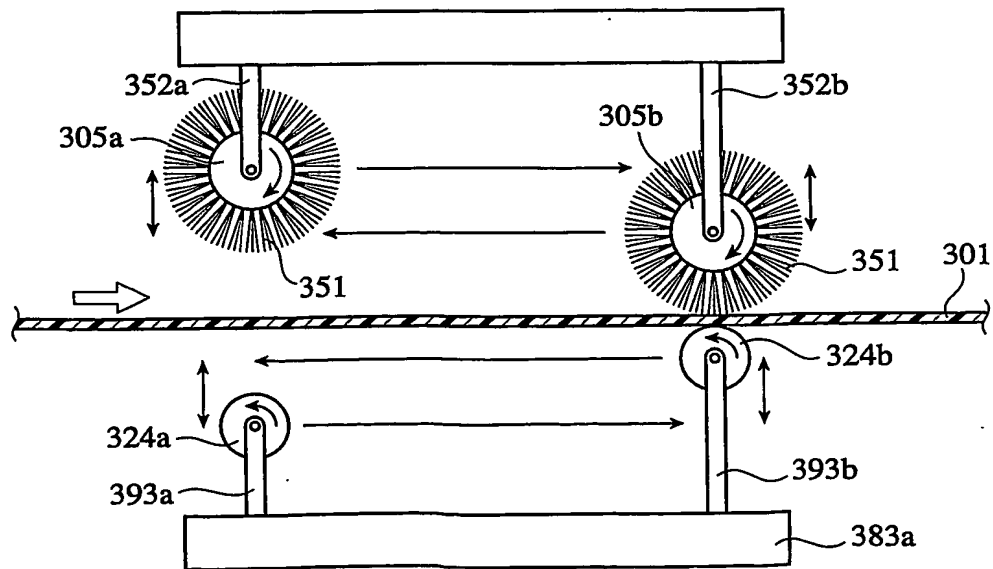


図37(b)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 International application No.
 PCT/JP03/12103

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ B29C47/00, B29C55/28, B32B27/36//B29K67:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ B29C47/00-47/96, B29C55/00-55/30, B32B27/00-27/42

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	EP 641638 A1 (MITSUBISHI PETROCHEMICAL CO., LTD.), 08 March, 1995 (08.03.95), Page 3, lines 54 to 55; page 5, lines 25 to 31; page 5, line 50 to page 6, line 1; page 7, lines 32 to 39; Fig. 1 & JP 7-60833 A Claim 1; Par. Nos. [0005], [0010], [0012]	16-23 1-15, 24-41
Y A	JP 2-261624 A (Shin'etsu Firumu Kabushiki Kaisha), 24 October, 1990 (24.10.90), Claims; Fig. 1 (Family: none)	16-23 1-15, 24-41

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- "&" document member of the same patent family

 Date of the actual completion of the international search
 13 January, 2004 (13.01.04)

 Date of mailing of the international search report
 03 February, 2004 (03.02.04)

 Name and mailing address of the ISA/
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12103

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 51-40904 B2 (Toyobo Co., Ltd.), 06 November, 1976 (06.11.76), Claims; page 2, left column, lines 34 to 43 (Family: none)	21, 22 10-14
Y A	JP 2000-52397 A (Nippon Shokubai Co., Ltd.), 22 February, 2000 (22.02.00), Par. Nos. [0014] to [0018] (Family: none)	18 7
Y A	JP 7-52238 A (Sekisui Chemical Co., Ltd.), 28 February, 1995 (28.02.95), Par. No. [0034]; Fig. 1 (Family: none)	23 1-22
A	EP 1059326 A2 (MITSUI CHEMICALS, INC.), 12 June, 2000 (12.06.00), Claims; Par. Nos. [0024] to [0028], [0146] to [0151], table 1 & JP 2001-54929 A Claims; Par. Nos. [0023], [0128]; table 1	1-15
A	JP 2-123129 A (Toray Industries, Inc.), 10 May, 1990 (10.05.90), Full text (Family: none)	24-41
A	JP 2002-59487 A (Seiji KAGAWA), 26 February, 2002 (26.02.02), Claims; Par. No. [0077]; Figs. 1 to 11 (Family: none)	32-34

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP03/12103

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:

because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. ☐ Claims Nos.:

because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. ☐ Claims Nos.:

because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

Claims 16 to 23 relate to an inflation molding apparatus having a warm air blow-off device for a polybutylene terephthalate resin.

Claims 1 to 15 and 24 to 41 relate to a molding method comprising molding a film of polybutylene terephthalate at a specific extrusion temperature and under a specific extrusion pressure, and a film laminate produced by said molding method.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.

2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.

3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.

☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B29C47/00、B29C55/28、B32B27/36
//B29K67:00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B29C47/00~47/96、B29C55/00~55/30、
B32B27/00~27/42

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2004年

日本国登録実用新案公報 1994-2004年

日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	EP 641638 A1 (MITSUBISHI PETROCHEMICAL CO., LTD)	16-23
A	1995. 03. 08, 第3頁第54-55行, 第5頁第25-31行, 第5頁第50行-第6頁第1行, 第7頁第32行-第39行, 第1図 & JP 7-60833 A 請求項1, 【0005】, 【0010】, 【0012】	1-15, 24-41
Y	JP 2-261624 A (信越フィルム株式会社)	16-23
A	1990. 10. 24, 特許請求の範囲, 第1図 (ファミリーなし)	1-15, 24-41

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に関する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 01. 04

国際調査報告の発送日

03. 2. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

斎藤 克也

印

4 F

3122

電話番号 03-3581-1101 内線 3430

C (続き). 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP 51-40904 B2 (東洋紡績株式会社) 1976. 11. 06, 特許請求の範囲, 第2頁左欄第34-43 行 (ファミリーなし)	21, 22 10-14
Y A	JP 2000-52397 A (株式会社日本触媒) 2000. 02. 22, 【0014】-【0018】 (ファミリーなし)	18 7
Y A	JP 7-52238 A (積水化学株式会社) 1995. 02. 28, 【0034】, 第1図 (ファミリーなし)	23 1-22
A	EP 1059326 A2 (MITSUI CHEMICALS, INC) 2000. 06. 12, Claims, 【0024】-【0028】, 【0146】-【0151】, Table1 & JP 2001-54929 A, 特許請求の範囲, 【002 3】, 【0128】, 第1表	1-15
A	JP 2-123129 A (東レ株式会社) 1990. 05. 10, 文献全体 (ファミリーなし)	24-41
A	JP 2002-59487 A (加川清二) 2002. 02. 26, 特許請求の範囲, 【0077】, 第1-1 1図 (ファミリーなし)	32-34

第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

・請求の範囲16-23は、ポリブチレンテレフタレート樹脂フィルムの温風吹出装置を有するインフレーション成形装置に関するものである。

・請求の範囲1-15及び24-41は、ポリブチレンテレフタレートのフィルムを押出温度と押出圧力を規定して成形する方法に関するもの、及び、該成形方法によって得られたフィルムの積層体に関するものである。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。